

JP2001294851A

2001-10-23

**Bibliographic Fields**

**Document Identity**

(19)【発行国】

日本国特許庁(JP)

(12)【公報種別】

公開特許公報(A)

(11)【公開番号】

特開2001-294851(P2001-294851A)

(43)【公開日】

平成13年10月23日(2001.10.23)

**Public Availability**

(43)【公開日】

平成13年10月23日(2001.10.23)

**Technical**

(54)【発明の名称】

新規アゾールホウ素化合物、発光素子材料およびそれを使用した発光素子

(51)【国際特許分類第7版】

C09K 11/06 660

C07F 5/02

H05B 33/14

【FI】

C09K 11/06 660

C07F 5/02 D

H05B 33/14 B

【請求項の数】

6

【出願形態】

OL

【全頁数】

19

【テーマコード(参考)】

3K0074H048

【Fターム(参考)】

(19) [Publication Office]

Japan Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document]

Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number of Unexamined Application]

Japan Unexamined Patent Publication 2001 - 294851 (P2001 - 294851A)

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

Heisei 13 year October 23 days (2001.10.23)

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

Heisei 13 year October 23 days (2001.10.23)

(54) [Title of Invention]

NOVEL AZOLE BORATED COMBINATION ONES,  
LIGHT EMITTING DEVICE MATERIAL AND LIGHT  
EMITTING DEVICE WHICH USES THAT

(51) [International Patent Classification, 7th Edition]

C09K 11/06 660

C07F 5/02

H05B 33/14

【FI】

C09K 11/06 660

C07F 5/02 D

H05B 33/14 B

【Number of Claims】

6

【Form of Application】

OL

【Number of Pages in Document】

19

【Theme Code (For Reference)】

3 K0074H048

【F Term (For Reference)】

22278 U.S. PTO  
10/768776



013004

**JP2001294851A**

**2001-10-23**

3K007 AB04 AB18 BA01 DA02 4H048 AA03  
AB92 VA11 VA20 VA32 VA42 VA75 VA77  
VB10

3 K007 AB04 AB18 BA 01 DA02 4H048 AA03 AB92 VA  
11 VA 20 VA 32 VA 42 VA 75 VA 77 VB10

**Filing**

【審査請求】

[Request for Examination]

未請求

Unrequested

(21)【出願番号】

(21) [Application Number]

特願2000-111014(P2000-111014)

Japan Patent Application 2000 - 1 110 14 (P2000 - 1 110 14 )

(22)【出願日】

(22) [Application Date]

平成12年4月12日(2000.4.12)

2000 April 12 days (2000.4 . 12)

**Parties**

**Applicants**

(71)【出願人】

(71) [Applicant]

【識別番号】

[Identification Number]

000005201

000005201

【氏名又は名称】

[Name]

富士写真フイルム株式会社

FUJI PHOTO FILM CO. LTD. (DB 69-053-6693 )

【住所又は居所】

[Address]

神奈川県南足柄市中沼210番地

Kanagawa Prefecture Minami Ashigara City Nakanuma 2 10

**Inventors**

(72)【発明者】

(72) [Inventor]

【氏名】

[Name]

柳 輝一

Willow Terukazu

【住所又は居所】

[Address]

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真フ  
イルム株式会社内

Inside of Kanagawa Prefecture Minami Ashigara City  
Nakanuma 2 10 Fuji Photo Film Co. Ltd. (DB 69-053-6693 )

**Agents**

(74)【代理人】

(74) [Attorney(s) Representing All Applicants]

【識別番号】

[Identification Number]

100105647

100105647

【弁理士】

[Patent Attorney]

【氏名又は名称】

[Name]

小栗 昌平 (外4名)

Oguri Shohei (Outside 4 persons )

**Abstract**

(57)【要約】

(57) [Abstract]

【課題】

[Problems to be Solved by the Invention]

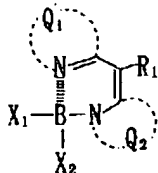
強度が強く、半値幅の狭い蛍光を発する化合物およびそれを用いた発光素子を提供する。

# 【解決手段】

下記の一般式(I)で表される化合物またはその互変異性体を用いる。

## 【化1】

一般式 (I)



式中、R<sub>1</sub> は水素原子または置換基を表す。

X<sub>1</sub> および X<sub>2</sub> はそれぞれハロゲン原子、アリール基、脂肪族炭化水素基などを表す。

Q<sub>1</sub>、Q<sub>2</sub> はそれぞれ含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表すが、同時にピロール環であることはない。

## Claims

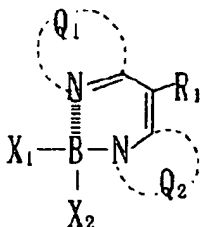
### 【特許請求の範囲】

#### 【請求項1】

下記一般式(I)で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材料。

## 【化1】

一般式 (I)



(式中、R<sub>1</sub> は水素原子または置換基を表す。X<sub>1</sub> および X<sub>2</sub> はそれぞれハロゲン原子、カルボキシラート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。X<sub>1</sub> と X<sub>2</sub> は連結してもよい。Q<sub>1</sub> は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。Q<sub>2</sub> は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。但し、Q<sub>1</sub>、Q<sub>2</sub>

intensity is strong, compound which gives out fluorescence where the width at half height is narrow and light emitting device which uses that are offered.

## [Means to Solve the Problems]

compound which is displayed with below-mentioned General Formula (I) or the tautomer is used.

## [Chemical Formula 1]

In Formula, R<sub>1</sub> displays hydrogen atom or substituent.

Displays X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub> respective halogen atom, aryl group, aliphatic hydrocarbon group etc.

Q<sub>1</sub>、Q<sub>2</sub> displays atom group which is necessary in order respectively to form nitrogen-containing heterocyclic ring, but there are not times when it is a pyrrole ring simultaneously.

## [Claim(s)]

### [Claim 1]

compound which is displayed with below-mentioned General Formula (I) or its tautomer and light emitting device material. which is made feature

## [Chemical Formula 1]

(In Formula, R<sub>1</sub> displays hydrogen atom or substituent. X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub> respective halogen atom, carboxylate basis, display aliphatic hydrocarbon group, aryl group or heterocyclic group. It is possible to connect X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub>. Q<sub>1</sub> displays atom group which is necessary in order to form the nitrogen-containing heterocyclic ring. Q<sub>2</sub> displays atom group which is necessary in order to form the nitrogen-containing

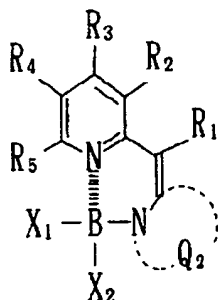
が同時にピロール環であることはない。)

【請求項 2】

下記一般式(II)で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材料。

【化 2】

一般式 (II)



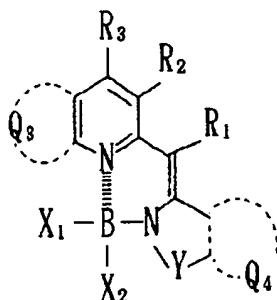
(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  および  $R_5$  はそれぞれ水素原子または置換基を表し、可能な場合は互いが連結して環を形成してもよい。 $X_1$  および  $X_2$  はそれぞれハロゲン原子、カルボキシレート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 $X_1$  と  $X_2$  は連結してもよい。 $Q_2$  は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

【請求項 3】

下記一般式(III)で表される化合物またはその互変異性体。

【化 3】

一般式 (III)



(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$  はそれぞれ水素原子または置換基を表し、可能な場合は互いが連結して環

heterocyclic ring. However, there are not times when  $Q_1$ 、 $Q_2$  is pyrrole ring simultaneously. )

[Claim 2]

compound which is displayed with below-mentioned General Formula (II) or its tautomer and light emitting device material. which is made feature

[Chemical Formula 2]

(In Formula,  $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  and  $R_5$  you display hydrogen atom or substituent respectively, in possible case each other connecting, you are possible to form ring.  $X_1$  and  $X_2$  respective halogen atom, carboxylate basis, display aliphatic hydrocarbon group, aryl group or heterocyclic group. It is possible to connect  $X_1$  and  $X_2$ .  $Q_2$  displays atom group which is necessary in order to form the nitrogen-containing heterocyclic ring. )

[Claim 3]

compound which is displayed with below-mentioned general formula (III) or the tautomer.

[Chemical Formula 3]

(In Formula,  $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$  you display hydrogen atom or substituent respectively, impossible case each other

を形成してもよい。X<sub>1</sub> および X<sub>2</sub> はそれぞれハロゲン原子、カルボキシレート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。X<sub>1</sub> と X<sub>2</sub> は連結してもよい。Y はカルボニル基、スルホ基、スルホニル基またはホスホニル基を表す。Q<sub>3</sub>、Q<sub>4</sub> は環を形成するのに必要な原子群を表す。)

【請求項 4】

一般式(III)で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材料。

【請求項 5】

一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が請求項 1 ないし 4 記載の一般式(I)、(II)、もしくは(III)で表される化合物またはその互変異性体を少なくとも 1 種含有する層であることを特徴とする発光素子。

【請求項 6】

一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が請求項 1 ないし 4 記載の一般式(I)、(II)、もしくは(III)で表される化合物またはその互変異性体の少なくとも一種をポリマーに分散した層であることを特徴とする発光素子。

Specification

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明はフィルター用染料、色変換フィルター、写真感光材料染料、増感色素、パルプ染色用染料、レーザー色素、医療診断用蛍光薬剤、発光素子用材料等に用いるに適した化合物およびそれらを用いた発光素子に関するものであり、詳しくは表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、標識、看板、インテリア等の分野に好適に使用できる発光素子材料および高輝度の発光素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

有機物質を使用した発光素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用

connecting, you are possible to form ring. X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub> respective halogen atom, carboxylate basis, display aliphatic hydrocarbon group, aryl group or heterocyclic group. It is possible to connect X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub>. Y displays carbonyl group, sulfo group, sulfonyl group or phosphonyl group. Q<sub>3</sub>, Q<sub>4</sub> displays atom group which is necessary in order to form ring. )

[Claim 4]

compound which is displayed with general formula (III) or it is tautomer and light emitting device material. which is made feature

[Claim 5]

General Formula which at least one layer states in Claim 1 to 4 in light emitting device which formed organic compound thin layer of plural including light emitting layer or light emitting layer between pair of electrodes, (I), (II), or compound which is displayed with (III) or it is a layer which at least 1 kind contains tautomer and light emitting device. which is made feature

[Claim 6]

General Formula which at least one layer states in Claim 1 to 4 in light emitting device which formed organic compound thin layer of plural including light emitting layer or light emitting layer between pair of electrodes, (I), (II), or compound which is displayed with (III) or it is a layer which disperses at least one kind of tautomer to polymer and the light emitting device. which is made feature

[Description of the Invention]

[0001]

[Technological Field of Invention]

As for this invention it uses for material etc for fluorescence chemical, light emitting device of dye, laser dye, medical diagnosis of dye, color conversion filter, photographic photosensitive material dye, sensitizing dye, pulp dyeing of filter being something compound which is suited and light emitting device which uses those regarding, as for details display element, display, back light, electrophotograph, illuminating light source, recording light source, it is something regarding light emitting device of light emitting device material and high brightness which can be used for ideal in labelling, signboard, interior or other field.

[0002]

[Prior Art]

light emitting device which uses organic substance is promising is considered that the application as inexpensive

途が有望視され、多くの開発が行われている。

一般に発光素子は、発光層及び該層を挟んだ一対の対向電極から構成されている。

発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極から電子が注入され、陽極から正孔が注入される。

更に、この電子と正孔が発光層において再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

【0003】

従来の発光素子は、駆動電圧が高く、発光輝度や発光効率も低かった。

また、特性劣化も著しく実用化には至っていないかった。

近年、10V 以下の低電圧で発光する高い蛍光量子効率を持った有機化合物を含有した薄膜を積層した発光素子が報告され(アブライド フィジックス レターズ、51 巻、913 頁、1987 年)、関心を集めている。

この方法は、金属キレート錯体、蛍光帯層、アミン化合物を正孔注入層に使用して、高輝度の緑色発光を得ており、6~7V の直流電圧で輝度は数 1000cd/m<sup>2</sup> に達している。

しかしながら実用的な素子を考えた場合、更なる高輝度化、高効率発光素子の開発が望まれている。

また、フルカラーディスプレイ、光源としての利用を考えた場合、実用上は三原色あるいは白色を出す必要がある。

上記の素子は発光材料として 8-キノリノールの Al 錯体(Alq)を用いており、発光色は緑色であり、他の発光色の発光素子の開発が望まれている。

これまで緑色以外に発光する発光材料が種々開発されているものの発光輝度、発光効率が低い、耐久性が低いなどの問題があり、実用に供し得なかった。

【0004】

一方、発光素子において高輝度発光を実現しているものは有機物質を真空蒸着によって積層し

large surface area full color display element of solid light-emitting type many developments are done.

Generally light emitting device is formed from counterelectrode of pair which put between light emitting layer and said layer.

As for light emitting, when electric field imparting is done between both electrodes, electron is filled from cathode, positive hole is filled from the anode.

Furthermore, this electron and positive hole recombination it does in light emitting layer, it is a phenomena which discharges energy occasion where energy level returns to valence electron band from conduction band as light.

【0003】

As for conventional light emitting device, drive voltage was high, also light emitting brightness and light emission efficiency were low.

In addition, either property degradation had not reached to utilization considerably.

light emitting device which laminates thin film which contains organic compound which had high fluorescence quantum efficiency where recently, light emitting it does with low voltage of 10 V or less is reported and (Applied physics letters, Vol.51, 913 page, 1987), gathers interest.

This method, metal chelate complex, fluorescence band layer, using amine compound for hole injection layer, has obtained green color light emitting of high brightness, brightness has reached to several 1000cd/m<sup>2</sup> with direct current voltage of 6 - 7 V.

But when of practical element was thought, development of further increased brightness, high efficiency light emitting device is desired.

In addition, when of utilization as full color display and light source was thought, in regard to utility necessary to put out three basic colors or the white it is.

Above-mentioned element 8-quinolinol has used Al complex (Alq) as light-emitting material, as for emission color with green color, development of light emitting device of other emission color is desired.

So far, light-emitting material which light emitting is done various light emitting brightness, light emission efficiency of those which are developed is low other than green color, there was a or other problem where durability is low, could not offer to utility.

【0004】

On one hand, those which actualize high brightness light emitting in light emitting device are the element which

ている素子であるが、製造工程の簡略化、加工性、大面積化等の観点から塗布方式による素子作製が望ましい。

しかしながら、従来の塗布方式で作製した素子では発光輝度、発光効率の点で蒸着方式で作製した素子に劣っており、高輝度、高効率発光化が大きな課題となっていた。

また、有機低分子化合物を有機ポリマー媒体に分散して塗布した素子では、長時間発光させた場合有機低分子化合物が凝集するなどの原因により均質な面状発光が難しいといった課題があった。

#### 【0005】

また、近年、フィルター用染料、色変換フィルター、写真感光材料染料、増感色素、パルプ染色用染料、レーザー色素、医療診断用蛍光薬剤、発光素子用材料等に蛍光を有する材料が種々用いられ、その需要が高まっているが、特に有機発光素子をフルカラーディスプレイへと適用することが活発に検討されている。

高性能フルカラーディスプレイを開発するためには、青、緑、赤、それぞれ発光の色純度を高くする必要がある。

しかしながら Alq に代表される発光材料はブロードな発光を有するものが多く、蛍光の半値幅が狭く、且つ強度の強い材料の開発が望まれていた。

#### 【0006】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明の第一の目的は強度が強く、半値幅の狭い蛍光を発する化合物を提供することにある。

本発明の第二の目的は強度が強く、半値幅の狭い蛍光を発する発光素子材料、発光素子を提供することにある。

#### 【0007】

##### 【課題を解決するための手段】

この課題は下記手段によって達成された。

(1) 下記一般式(I)で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材

laminates organic substance with vacuum vapor deposition, but from simplification and fabricability, surface area enlarging or other viewpoint of production step element construction is desirable with coating system.

But, in element which is produced with conventional coating system we were inferior to element which in point of light emitting brightness, light emission efficiency is produced with vapor deposition system, we had become problem whose high brightness, high efficiency light emitting conversion is large.

In addition, dispersing organic low-molecular weight compound to organic polymer media, with element which coating fabric is done, when lengthy light emitting it does, there was a problem that uniform surface condition light emitting is difficult organic low-molecular weight compound it coheres with or other cause which becomes.

#### 【0005】

In addition, recently, various it can use material which possesses fluorescence in material etc for fluorescence chemical, light emitting device of dye, laser dye, medical diagnosis of dye, color conversion filter, photographic photosensitive material dye, sensitizing dye, pulp dyeing of filter, demand has increased, but especially organic light emitting device is examined to with full color display is applied actively.

In order to develop high performance full color display, blue, green, red, it is necessary to make color purity of respective light emitting high.

But as for light-emitting material which is represented in Alq those which possess broad light emitting are many, width at half height of fluorescence is narrow, development of material where at same time intensity is strong was desired.

#### 【0006】

##### [Problems to be Solved by the Invention]

objective of first of this invention intensity is strong, it is to offer compound which gives out fluorescence where width at half height is narrow.

second objective of this invention intensity is strong, it is to offer light emitting device material, light emitting device which gives out fluorescence where width at half height is narrow.

#### 【0007】

##### [Means to Solve the Problems]

This problem was achieved with below-mentioned means.

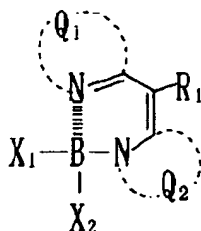
compound which is displayed with (1) below-mentioned General Formula (I) or it is tautomer and light emitting device

料。

【0008】

【化 4】

一般式 (I)



【0009】

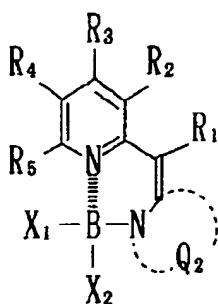
(式中、 $R_1$  は水素原子または置換基を表す。 $X_1$  および  $X_2$  はそれぞれハロゲン原子、カルボキシラート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 $X_1$  と  $X_2$  は連結してもよい。 $Q_1$  は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。 $Q_2$  は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。但し、 $Q_1$ 、 $Q_2$  が同時にピロール環であることはない。)

(2) 下記一般式(II)で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材料。

【0010】

【化 5】

一般式 (II)



【0011】

(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  および  $R_5$  は水素原子または置換基を表し、可能な場合は互いが連結して環を形成してもよい。 $X_1$  および  $X_2$  はそれぞれハロゲン原子、カルボキシラート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)

material. which is made feature

[0008]

[Chemical Formula 4]

[0009]

(In Formula,  $R_1$  displays hydrogen atom or substituent.  $X_1$  and  $X_2$  respective halogen atom, carboxylate basis, display aliphatic hydrocarbon group, aryl group or heterocyclic group. It is possible to connect  $X_1$  and  $X_2$ .  $Q_1$  displays atom group which is necessary in order to form the nitrogen-containing heterocyclic ring.  $Q_2$  displays atom group which is necessary in order to form the nitrogen-containing heterocyclic ring. However, there are not times when  $Q_1$ 、 $Q_2$  is pyrrole ring simultaneously.)

compound which is displayed with (2) below-mentioned General Formula (II) or it is tautomer and light emitting device material. which is made feature

[0010]

[Chemical Formula 5]

[0011]

(In Formula,  $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  and  $R_5$  you display hydrogen atom or substituent, impossible case each other connecting, you are possible to form ring.  $X_1$  and  $X_2$  respective halogen atom, carboxylate basis, display aliphatic hydrocarbon group, aryl group or heterocyclic group. It is possible to



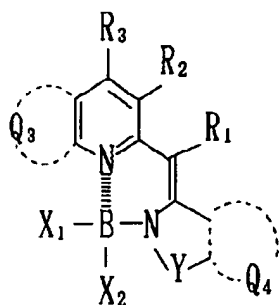
す。X<sub>1</sub> と X<sub>2</sub> は連結してもよい。Q<sub>2</sub> は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

(3)下記一般式(III)で表される化合物またはその互変異性体。

【0012】

【化 6】

一般式 (III)



【0013】

(式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub> はそれぞれ水素原子または置換基を表し、可能な場合は互いが連結して環を形成してもよい。X<sub>1</sub> および X<sub>2</sub> はそれぞれハロゲン原子、カルボキシラート基、脂肪族炭化水素基、アール基またはヘテロ環基を表す。X<sub>1</sub> と X<sub>2</sub> は連結してもよい。Y はカルボニル基、スルホ基、スルホニル基またはホスホニル基を表す。)

(4)上記一般式(III)で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材料。

(5)一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が(1)ないし(4)記載の一般式(I)、(II)、もしくは(III)で表される化合物またはその互変異性体を少なくとも1種含有する層であることを特徴とする発光素子。

(6)一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が(1)ないし(4)記載の一般式(I)、(II)、もしくは(III)で表される化合物またはその互変異性体を少なくとも一種ポリマーに分散した層であることを特徴とする発光素子。

connect X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub>. Q<sub>2</sub> displays atom group which is necessary in order to form the nitrogen-containing heterocyclic ring. )

compound which is displayed with (3) below-mentioned general formula (III ) or tautomer.

[0012]

[Chemical Formula 6]

[0013]

(In Formula, R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub> you display hydrogen atom or substituent respectively, impossible case each other connecting, you are possible to form ring. X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub> respective halogen atom、 carboxylate basis, display aliphatic hydrocarbon group、 aryl group or heterocyclic group. It is possible to connect X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub>. Y displays carbonyl group、 sulfo group、 sulfonyl group or phosphoryl group. )

compound which is displayed with (4) above-mentioned general formula (III ) or it is tautomer and light emitting device material. which is made feature

at least one layer General Formula of (1) through (4) statement (I ), (II ), or compound which is displayed with (III ) or is layer which at least 1 kind contains tautomer in light emitting device which formed organic compound thin layer of plural which includes light emitting layer or light emitting layer between (5) pair of electrodes, and the light emitting device. which is made feature

at least one layer General Formula of (1) through (4) statement (I ), (II ), or compound which is displayed with (III ) or is layer which disperses the tautomer to at least one kind polymer in light emitting device which formed organic compound thin layer of plural which includes light emitting layer or light emitting layer between (6) pair of electrodes, and the light emitting device. which is made feature

[0014]

## 【発明の実施の形態】

まず、本発明の一般式(I)で表される化合物について詳細に説明する。

R<sub>1</sub> は水素原子または置換基を表し、R<sub>1</sub> で表される置換基としては、例えばアルキル基(好ましくは炭素数 1~20、より好ましくは炭素数 1~12、特に好ましくは炭素数 1~8 であり、例えばメチル、エチル、iso-プロピル、tert-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数 2~20、より好ましくは炭素数 2~12、特に好ましくは炭素数 2~8 であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数 2~20、より好ましくは炭素数 2~12、特に好ましくは炭素数 2~8 であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数 6~30、より好ましくは炭素数 6~20、特に好ましくは炭素数 6~12 であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。)、アミノ基(好ましくは炭素数 0~20、より好ましくは炭素数 0~10、特に好ましくは炭素数 0~6 であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジフェニルアミノ、ジベンジルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数 1~20、より好ましくは炭素数 1~12、特に好ましくは炭素数 1~8 であり、例えばメキシ、エトキシ、ブトキシなどが挙げられる。)、アリールオキシ基(好ましくは炭素数 6~20、より好ましくは炭素数 6~16、特に好ましくは炭素数 6~12 であり、例えばフェニルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。)、アシル基(好ましくは炭素数 1~20、より好ましくは炭素数 1~16、特に好ましくは炭素数 1~12 であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数 2~20、より好ましくは炭素数 2~16、特に好ましくは炭素数 2~12 であり、例えばメキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニル基(好ましくは炭素数 7~20、より好ましくは炭素数 7~16、特に好ましくは炭素数 7~10 であり、)

[0015]

例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。

)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数 2~20、より好ましくは炭素数 2~16、特に好ましくは炭素数 2~10 であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキ

[0014]

## [Embodiment of the Invention]

First, you explain in detail concerning compound which is displayed with General Formula (I) of this invention.

As substituent where R<sub>1</sub> displays hydrogen atom or substituent, is displayed with the R<sub>1</sub>, for example alkyl group (With preferably carbon number 1~20, more preferably carbon number 1~12, particularly preferably carbon number 1~8, you can list for example methyl, ethyl, iso-propyl, t-butyl and n-octyl, n-decyl, n-hexadecyl, cyclopropyl, cyclopentyl, cyclohexyl etc.), alkenyl group (With preferably carbon number 2~20, more preferably carbon number 2~12, particularly preferably carbon number 2~8, you can list for example vinyl, allyl, 2-butenyl, 3-pentenyl etc.), alkynyl group (With preferably carbon number 2~20, more preferably carbon number 2~12, particularly preferably carbon number 2~8, you can list for example propargyl, 3-pentynyl etc.), aryl group (With preferably carbon number 6~30, more preferably carbon number 6~20, particularly preferably carbon number 6~12, you can list for example phenyl, p-methylphenyl, naphthyl etc.), the amino group (With preferably carbon number 0~20, more preferably carbon number 0~10, particularly preferably carbon number 0~6, you can list for example amino, methylamino, dimethylamino, diethyl amino and diphenylamino, dibenzyl amino etc.), alkoxy group (With preferably carbon number 1~20, more preferably carbon number 1~12, particularly preferably carbon number 1~8, you can list for example methoxy, ethoxy, butoxy etc.), aryloxy group (With preferably carbon number 6~20, more preferably carbon number 6~16, particularly preferably carbon number 6~12, you can list for example phenyl oxy, 2-naphthyloxy etc.), acyl group (With preferably carbon number 1~20, more preferably carbon number 1~16, particularly preferably carbon number 1~12, you can list for example acetyl, benzoyl, formyl, pivaloyl etc.), alkoxy carbonyl group (With preferably carbon number 2~20, more preferably carbon number 2~16, particularly preferably carbon number 2~12, you can list for example methoxycarbonyl, ethoxy carbonyl etc.), aryloxy carbonyl group (With preferably carbon number 7~20, more preferably carbon number 7~16, particularly preferably carbon number 7~10, )

[0015]

You can list for example phenyl oxycarbonyl etc.

) acyloxy group (With preferably carbon number 2~20, more preferably carbon number 2~16, particularly preferably carbon number 2~10, you can list for example

シなどが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数 2~20、より好ましくは炭素数 2~16、特に好ましくは炭素数 2~10 であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数 2~20、より好ましくは炭素数 2~16、特に好ましくは炭素数 2~12 であり、例えばメキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリーロキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数 7~20、より好ましくは炭素数 7~16、特に好ましくは炭素数 7~12 であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基(好ましくは炭素数 1~20、より好ましくは炭素数 1~16、特に好ましくは炭素数 1~12 であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数 0~20、より好ましくは炭素数 0~16、特に好ましくは炭素数 0~12 であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)

## 【0016】

カルバモイル基(好ましくは炭素数 1~20、より好ましくは炭素数 1~16、特に好ましくは炭素数 1~12 であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数 1~20、より好ましくは炭素数 1~16、特に好ましくは炭素数 1~12 であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数 6~20、より好ましくは炭素数 6~16、特に好ましくは炭素数 6~12 であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数 1~20、より好ましくは炭素数 1~16、特に好ましくは炭素数 1~12 であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数 1~20、より好ましくは炭素数 1~16、特に好ましくは炭素数 1~12 であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数 1~20、より好ましくは炭素数 1~16、特に好ましくは炭素数 1~12 であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数 1~20、より好ましくは炭素数 1~16、特に好ましくは炭素数 1~12 であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキسام酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好

acetoxy、benzoyl oxy etc. ), acyl amino group (With preferably carbon number 2~20、more preferably carbon number 2~16、particularly preferably carbon number 2~10、you can list for example acetylamino、benzoyl amino etc. ), alkoxy carbonyl amino group (With preferably carbon number 2~20、more preferably carbon number 2~16、particularly preferably carbon number 2~12、you can list for example methoxycarbonylamino etc. ), aryloxy carbonyl amino group (With preferably carbon number 7~20、more preferably carbon number 7~16、particularly preferably carbon number 7~12、you can list for example phenyl oxycarbonyl amino etc. ), sulfonyl amino group (With preferably carbon number 1~20、more preferably carbon number 1~16、particularly preferably carbon number 1~12、you can list for example methane sulfonyl amino、benzene sulfonyl amino etc. ), sulfamoyl group (With preferably carbon number 0~20、more preferably carbon number 0~16、particularly preferably carbon number 0~12、you can list for example sulfamoyl、methyl sulfamoyl、dimethyl sulfamoyl、phenyl sulfamoyl etc. ),

## 【0016】

carbamoyl group (With preferably carbon number 1~20、more preferably carbon number 1~16、particularly preferably carbon number 1~12、you can list for example carbamoyl、methyl carbamoyl、diethyl carbamoyl、phenyl carbamoyl etc. ), alkyl thio group (With preferably carbon number 1~20、more preferably carbon number 1~16、particularly preferably carbon number 1~12、you can list for example methylthio、ethyl thio etc. ), aryl thio group (With preferably carbon number 6~20、more preferably carbon number 6~16、particularly preferably carbon number 6~12、you can list for example phenylthio etc. ), sulfonyl group (With preferably carbon number 1~20、more preferably carbon number 1~16、particularly preferably carbon number 1~12、you can list for example mesyl、tosyl etc. ), sulfinyl group (With preferably carbon number 1~20、more preferably carbon number 1~16、particularly preferably carbon number 1~12、you can list for example methane sulfinyl、benzene sulfinyl etc. ), ureido group (With preferably carbon number 1~20、more preferably carbon number 1~16、particularly preferably carbon number 1~12、you can list for example ureido、methyl ureido、phenyl ureido etc. ), phosphoric acid amide group (With preferably carbon number 1~20、more preferably carbon number 1~16、particularly preferably carbon number 1~12、you can list for example diethyl phosphoric acid amide、phenyl phosphoric acid amide etc. ), hydroxyl group、mercapto group、halogen atom (for example fluorine atom、chlorine atom、bromine atom、iodine atom ), cyano group、sulfo group、carboxyl group、nitro group、hydroxamic acid group、sulfinio group、hydrazino group、imino group、

ましくは炭素数 1~30、より好ましくは炭素数 1~12 であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、カルバゾリル、アゼピニルなどが挙げられる。)、シリル基 (好ましくは、炭素数 3~40、より好ましくは炭素数 3~30、特に好ましくは、炭素数 3~24 であり、例えば、トリメチルシリルトリフェニルシリルなどが挙げられる。))などが挙げられる。

これらの置換基は更に置換されてもよい。

また、置換基が二つ以上ある場合は、同じでも異なってもよい。

また、可能な場合には互いに連結して環を形成してもよい。

#### [0017]

置換基として好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アラキル基、アリール基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環基または置換基が連結して縮合環を形成したものであり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アラキル基、アリール基、アミノ基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環基、置換基が連結してベンゼン環を形成したものであり、更に好ましくはアルキル基、アラキル基、アリール基、アミノ基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環基、置換基が連結してベンゼン環を形成したものである。

#### [0018]

$R_1$  として好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、シアノ基、ヘテロ環基、 $Q_1$  と連結して環を形成したものであり、より好ましくは水素原子、炭素数 1~8 のアルキル基、 $Q_1$  と連結して環を形成したものであり、更に好ましくは水素原子、メチル基、 $Q_1$  と連結して環を形成したものであり、特に好ましくは、水素原子、 $Q_1$  と連結して 5 または 6 員環を形成したものである。

#### [0019]

$X_1$ 、 $X_2$  で表されるハロゲン原子は、例えば塩素原子、臭素原子、フッ素原子が挙げられ、好ましくは塩素原子、フッ素原子であり、より好ましくはフッ素原子である。

heterocyclic group (With preferably carbon number 1~30, more preferably carbon number 1~12, for example nitrogen atom, oxygen atom, sulfur atom, you can list for example imidazolyl, pyridyl, quinolyl, furil, thienyl, bipyridyl, morpholino, benz oxazolyl, benzimidazolyl, benzo thiazolyl, carbozolyl, azepinyl etc concretely as the heteroatom. ), you can list silyl group (With preferably, carbon number 3~40, more preferably carbon number 3~30, particularly preferably, carbon number 3~24, you can list for example trimethylsilyl, triphenyl silyl etc. ) etc.

As for these substituent furthermore optionally substitutable.

In addition, when substituent is a two or more, being same, it is possible to differ.

In addition, in possible case connecting mutually, it is possible to form ring.

#### [0017]

preferably, alkyl group, alkenyl group, aralkyl group, aryl group, amino group, acyl group, alkoxy carbonyl group, aryloxy carbonyl group, carbonyl amino group, sulfonyl amino group, sulfamoyl group, carbamoyl group, hydroxyl group, cyano group, heterocyclic group or substituent connecting as substituent, being something which formed fused ring, more preferably alkyl group, alkenyl group, aralkyl group, aryl group, amino group, carbonyl amino group, sulfonyl amino group, hydroxyl group, cyano group, heterocyclic group, substituent connecting, being something which formed benzene ring, furthermore preferably alkyl group, aralkyl group, aryl group, amino group, carbonyl amino group, sulfonyl amino group, hydroxyl group, cyano group, heterocyclic group, substituent connecting, it is something which formed benzene ring.

#### [0018]

Connecting with preferably hydrogen atom, alkyl group, aryl group, cyano group, heterocyclic group,  $Q_1$  as  $R_1$ , being something which formed ring, connecting with alkyl group,  $Q_1$  of more preferably hydrogen atom, carbon number 1~8, being something which formed ring, furthermore connecting with preferably hydrogen atom, methyl group,  $Q_1$ , being something which formed ring, connecting with particularly preferably, hydrogen atom,  $Q_1$ , it is something which formed 5 or 6 members rings.

#### [0019]

As for halogen atom which is displayed with  $X_1$ ,  $X_2$ , you can list the for example chlorine atom, bromine atom, fluorine atom, with preferably chlorine atom, fluorine atom, it is a more preferably fluorine atom.

X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub> で表されるカルボキシラート基は、例えばアルキルカルボキシラート(好ましくは炭素数 2~20、より好ましくは炭素数 2~16、更に好ましくは炭素数 2~12 であり、例えばメチルカルボキシラート、エチルカルボキシラートなどが挙げられる。)、アリールカルボキシラート(好ましくは炭素数 7~20、より好ましくは炭素数 7~16、更に好ましくは炭素数 7~12 であり、例えばフェニルカルボキシラート、ナフチルカルボキシラートなどが挙げられる。)、ヘテロ環カルボキシラート(好ましくは炭素数 1~20、より好ましくは炭素数 1~12 であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばピリジルカルボキシラート、キノリンカルボキシラートなどが挙げられる。)や、X<sub>1</sub> と X<sub>2</sub> が連結したジカルボキシラート(好ましくは炭素数 2~20、より好ましくは炭素数 2~16、更に好ましくは炭素数 2~12 であり、例えばオキサレート、マロネート、サクシネートなどが挙げられる。)などが挙げられ、好ましくはアルキルカルボキシラートまたは X<sub>1</sub> と X<sub>2</sub> が連結したジカルボキシラートであり、より好ましくは X<sub>1</sub> と X<sub>2</sub> が連結したジカルボキシラートであり、更に好ましくはオキサレートである。

## 【0020】

X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub> で表される脂肪族炭化水素基は、直鎖、分岐または環状のアルキル基(好ましくは炭素数 1~30、より好ましくは炭素数 1~20、更に好ましくは炭素数 1~12 であり、例えばメチル、エチル、iso-プロピル、tert-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数 2~30、より好ましくは炭素数 2~20、更に好ましくは炭素数 2~12 であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数 2~30、より好ましくは炭素数 2~20、更に好ましくは炭素数 2~12 であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)であり、好ましくはアルキル基、アルケニル基であり、より好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、アリル基である。

## 【0021】

X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub> で表されるアリール基としては、好ましくは炭素数 6~30 の単環または二環のアリール基(例えばフェニル、ナフチルなどが挙げられる。)であり、より好ましくは炭素数 6~20 のフェニル基、更に好ましくは炭素数 6~12 のフェニル基である。

## 【0022】

As for carboxylate basis which is displayed with X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>, for example alkyl carboxylate (preferably carbon number 2~20, more preferably carbon number 2~16, furthermore with preferably carbon number 2~12, you can list for example methyl carboxylate, ethyl carboxylate etc.), aryl carboxylate (preferably carbon number 7~20, more preferably carbon number 7~16, furthermore with preferably carbon number 7~12, you can list for example phenyl carboxylate, naphthyl carboxylate etc.), heterocyclic ring carboxylate (With preferably carbon number 1~20, more preferably carbon number 1~12, for example nitrogen atom, oxygen atom, sulfur atom, you can list for example pyridyl carboxylate, quinolyl carboxylate etc concretely as the heteroatom.) and, you can list X<sub>1</sub> and the dicarboxylate (preferably carbon number 2~20, more preferably carbon number 2~16, furthermore with preferably carbon number 2~12, you can list for example oxalate, malonate, succinate etc.) etc which X<sub>2</sub> connects, with dicarboxylate which preferably alkyl carboxylate or X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub> connect, with dicarboxylate which more preferably X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub> connect, furthermore it is a preferably oxalate.

## 【0020】

aliphatic hydrocarbon group which is displayed with X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>, alkyl group of straight chain, branched or cyclic (preferably carbon number 1~30, more preferably carbon number 1~20, furthermore with preferably carbon number 1~12, you can list for example methyl, ethyl, iso-propyl, t-butyl and n-octyl, n-decyl, n-hexadecyl, cyclopropyl, cyclopentyl, cyclohexyl etc.), alkenyl group (preferably carbon number 2~30, more preferably carbon number 2~20, furthermore with preferably carbon number 2~12, you can list for example vinyl, allyl, 2-butenyl, 3-pentenyl etc.), with alkynyl group (preferably carbon number 2~30, more preferably carbon number 2~20, furthermore with preferably carbon number 2~12, you can list for example propargyl, 3-pentynyl etc.), with preferably alkyl group, alkenyl group, is more preferably methyl group, ethyl group, propyl group, butyl group, allyl group.

## 【0021】

With monocycle or bicyclic aryl group (You can list for example phenyl, naphthyl etc.) of preferably carbon number 6~30, phenyl group, of more preferably carbon number 6~20 furthermore it is a phenyl group of preferably carbon number 6~12 as aryl group which is displayed with X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>.

## 【0022】

$X_1$ 、 $X_2$  で表されるヘテロ環は、N、O または S 原子を少なくとも一つを含む 3 ないし 10 員の飽和もしくは不飽和のヘテロ環であり、これらは単環であってもよい、更に他の環と縮合環を形成してもよい。

ヘテロ環として好ましくは、5 ないし 6 員の芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは窒素原子を含む 5 ないし 6 員の芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは窒素原子を 1 ないし 2 原子含む 5 ないし 6 員の芳香族ヘテロ環である。

ヘテロ環の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデンなどが挙げられる。

ヘテロ環として好ましくは、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、キノリン、フタラジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、テトラゾール、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、より好ましくはイミダゾール、ピリジン、キノリン、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、更に好ましくは、ピリジン、キノリンである。

#### [0023]

$X_1$ 、 $X_2$  で表されるハロゲン原子、カルボキシレート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基は同一または互いに異なってもよい。

また、可能な場合には更に置換基を有してもよく、置換基としては一般式(I)における  $R_1$  で挙げたものが適用できる。

#### [0024]

$X_1$ 、 $X_2$  として好ましくはハロゲン原子、アリール基、脂肪族炭化水素基であり、より好ましくは塩素原子、フッ素原子、炭素数 6~20 のアリール

As for heterocyclic ring which is displayed with  $X_1$ 、 $X_2$ 、N、O or S atom 3 or 10-member where at least one is included with heterocyclic ring of saturated or unsaturated, as for these it is good even with monocycle and, furthermore it is possible to form other ring and fused ring.

With aromatic heterocyclic ring of preferably, 5 or 6 members, with aromatic heterocyclic ring of 5 or 6 members which include more preferably nitrogen atom, furthermore preferably nitrogen atom 1 or 2 atom it is a aromatic heterocyclic ring of 5 or 6 members which are included as heterocyclic ring.

As embodiment of heterocyclic ring, you can list for example pyrrolidine, piperidine, piperazine, morpholine, thiophene, furan, pyrrole, imidazole, pyrazole, pyridine, pyrazine, pyridazine, triazole, triazine, indole, indazole, purine, thiazoline, thiazole, thiadiazole, oxazoline, oxazole, oxadiazole, quinoline, isoquinoline, phthalazine, naphthyridine, quinoxaline, quinazoline, cinnoline, pteridine, acridine phenanthroline, phenazine, tetrazole, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, tetrazindene etc.

With preferably, pyrrole, imidazole, pyrazole, pyridine, pyrazine, pyridazine, triazole, triazine, indole, indazole, thiadiazole, oxadiazole, quinoline, phthalazine, quinoxaline, quinazoline, cinnoline, tetrazole, thiazole, oxazole benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, with more preferably imidazole, pyridine, quinoline, thiazole, oxazole, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, furthermore it is a preferably, pyridine, quinoline as the heterocyclic ring.

#### [0023]

halogen atom, carboxylate basis which is displayed with  $X_1$ 、 $X_2$ , aliphatic hydrocarbon group, aryl group or heterocyclic group may differ similarly or mutually.

In addition, in possible case it can apply those which are listed with  $R_1$  which furthermore is possible to possess substituent, as the substituent General Formula (I) in.

#### [0024]

With preferably halogen atom, aryl group, aliphatic hydrocarbon group, with alkyl group of aryl group, carbon number 1~12 of more preferably chlorine atom, fluorine

基、炭素数 1~12 のアルキル基であり、更に好ましくはフッ素原子、フェニル基、p-フルオロフェニル基、メチル基、エチル基であり、特に好ましくはフッ素原子である。

【0025】

Q<sub>1</sub> は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表し、Q<sub>1</sub> で表される含窒素ヘテロ環は 3 ないし、10 員の含窒素ヘテロ環であり、これらは単環であってもよいし、更に他の環と縮合環を形成してもよい。

含窒素ヘテロ環として好ましくは、5 ないし 6 員の含窒素芳香族ヘテロ環である。

ヘテロ環の具体例としては、例えばピロリジン、ビペリジン、ピペラジン、モルフォリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアソリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサソリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントリン、フェナジン、テトラゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデンなどが挙げられる。

ヘテロ環として好ましくは、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、キノリン、フタラジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、テトラゾール、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、より好ましくはイミダゾール、ピリジン、キノリン、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、更に好ましくは、ピリジン、キノリンである。

【0026】

Q<sub>2</sub> は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表し、Q<sub>2</sub> が形成する環としては飽和あるいは不飽和のヘテロ環が挙げられ、これらは単環であってもよいし、更に他の環と縮合環を形成してもよい。

Q<sub>2</sub> が形成する環として好ましくは 3 ないし 10 員のヘテロ環であり、より好ましくは 4 ないし 7 員のヘテロ環であり、更に好ましくは 5 ないし 6 員の

atom, carbon number 6~20, furthermore with preferably fluorine atom, phenyl group, p-fluorophenyl group, methyl group, ethyl group, it is a particularly preferably fluorine atom as X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub>.

【0025】

Q<sub>1</sub> forms nitrogen-containing heterocyclic ring displays atom group which is necessary, as for nitrogen-containing heterocyclic ring which is displayed with Q<sub>1</sub> 3 or 10 -member with nitrogen-containing heterocyclic ring, as for these is good even with monocycle and, furthermore it is possible to form other ring and fused ring.

It is a nitrogen-containing aromatic heterocyclic ring of preferably, 5 or 6 members as nitrogen-containing heterocyclic ring.

As embodiment of heterocyclic ring, you can list for example pyrrolidine, piperidine, piperazine, morpholine, pyrrole, imidazole, pyrazole, pyridine, pyrazine, pyridazine, triazole, triazine, indole, indazole, purine, thiazoline, thiazole, thiadiazole, oxazoline, oxazole, oxadiazole, quinoline, isoquinoline, phthalazine, naphthyridine, quinoxaline, quinazoline, cinnoline, pteridine, acridine phenanthroline, phenazine, tetrazole, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, tetrazaindene etc.

With preferably, pyrrole, imidazole, pyrazole, pyridine, pyrazine, pyridazine, triazole, triazine, indole, indazole, thiadiazole, oxadiazole, quinoline, phthalazine, quinoxaline, quinazoline, cinnoline, tetrazole, thiazole, oxazole, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, with more preferably imidazole, pyridine, quinoline, thiazole, oxazole, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, furthermore it is a preferably, pyridine, quinoline as the heterocyclic ring.

【0026】

Q<sub>2</sub> displays atom group which is necessary in order to form the nitrogen-containing heterocyclic ring can list to saturated or unsaturated heterocyclic ring as ring which Q<sub>2</sub> forms, these are good even with monocycle and, furthermore it is possible to form other ring and fused ring.

preferably 3 or 10 -member with heterocyclic ring, more preferably 4 or 7 -member with the heterocyclic ring, furthermore with heterocyclic ring of preferably 5 or 6

ヘテロ環であり、特に好ましくは 5 ないし 6 員の芳香族ヘテロ環である。

ヘテロ環の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントリン、フェナジン、テトラゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、イソインドリノン、ベンズイソチアゾールジオキシドなどが挙げられる。

ヘテロ環として好ましくは、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、キノリン、フタラジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、テトラゾール、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、イソインドリノン、ベンズイソチアゾールジオキシドであり、より好ましくはイミダゾール、ピリジン、キノリン、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、イソインドリノン、ベンズイソチアゾールジオキシドであり、更に好ましくは、ピリジン、キノリン、イソインドリノン、ベンズイソチアゾールジオキシドであり、特に好ましくは、イソインドリノン、ベンズイソチアゾールジオキシドである。

【0027】

一般式(I)で表される化合物のうち好ましくは一般式(II)で表される化合物である。

【0028】

【化 7】

members, it is a aromatic heterocyclic ring of the particularly preferably 5 or 6 members as ring which Q<sub>2</sub> forms.

As embodiment of heterocyclic ring, you can list for example pyrrolidine, piperidine, piperazine, morpholine, pyrrole, imidazole, pyrazole, pyridine, pyrazine, pyridazine, triazole, triazine, indole, indazole, purine, thiazoline, thiazole, thiadiazole, oxazoline, oxazole, oxadiazole, quinoline, isoquinoline, phthalazine, naphthyridine, quinoxaline, quinazoline, cinnoline, pteridine, acridine phenanthroline, phenazine, tetrazole, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, tetrazindene, isoindolinone, benzisothiazole dioxide etc.

With preferably, pyrrole, imidazole, pyrazole, pyridine, pyrazine, pyridazine, triazole, triazine, indole, indazole, thiadiazole, oxadiazole, quinoline, phthalazine, quinoxaline, quinazoline, cinnoline, tetrazole, thiazole, oxazole, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, isoindolinone, benzisothiazole dioxide, with more preferably imidazole, pyridine, quinoline, oxazole, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, isoindolinone, benzisothiazole dioxide, furthermore with preferably, pyridine, quinoline, isoindolinone, benzisothiazole dioxide, it is a particularly preferably, isoindolinone, benzisothiazole dioxide as heterocyclic ring.

【0027】

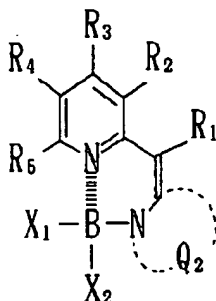
It is a compound which is displayed with inside preferably General Formula (II) of compound which is displayed with General Formula (I).

【0028】

[Chemical Formula 7]



## 一般式 (II)



【0029】

(式中、 $R_1$ 、 $X_1$ 、 $X_2$  および  $Q_2$  はそれぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  および  $R_5$  はそれぞれ水素原子または置換基を表し、可能な場合は互いが連結して環を形成してもよい。)

【0030】

$R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  または  $R_5$  で表される置換基は一般式(I)における  $R_1$  の置換基として挙げたものが適用できる。

$R_2$  として好ましくは水素原子、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基、アリール基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環基、ハロゲン原子、 $R_1$  と連結して環を形成したものであり、より好ましくは水素原子、アルキル基、ハロゲン原子、 $R_1$  と連結して環を形成したものであり、更に好ましくは水素原子、 $R_1$  と連結して環を形成したものである。

$R_3$  として好ましくは、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基、アリール基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環基、ハロゲン原子であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、ハロゲン原子であり、更に好ましくは水素原子である。

$R_4$ 、 $R_5$  として好ましくは、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基、アリール基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ

【0029】

(In Formula, as for  $R_1$ 、 $X_1$ 、 $X_2$  and  $Q_2$  those in respective General Formula (I) and being synonymous, also desirable range is similar.  $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  and  $R_5$  you display hydrogen atom or substituent respectively, impossible case each other connecting, you are possible to form ring.)

【0030】

As for substituent which is displayed with  $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  or  $R_5$  it can apply those which you list as substituent of  $R_1$  in General Formula (I).

preferably hydrogen atom, alkyl group, alkenyl group, aralkyl group, aryl group, amino group, acyl group, alkoxy carbonyl group, aryloxy carbonyl group, connecting with carbonyl amino group, sulfonyl amino group, sulfamoyl group, carbamoyl group, hydroxyl group, cyano group, heterocyclic group, halogen atom,  $R_1$  as  $R_2$ , beingsomething which formed ring, connecting with more preferably hydrogen atom, alkyl group, halogen atom,  $R_1$ , in beingsomething which formed ring, furthermore connecting with preferably hydrogen atom,  $R_1$ , it is something which formed ring.

preferably, hydrogen atom, alkyl group, alkenyl group, aralkyl group, aryl group, amino group, acyl group, alkoxy carbonyl group, aryloxy carbonyl group, with carbonyl amino group, sulfonyl amino group, sulfamoyl group, carbamoyl group, hydroxyl group, cyano group, heterocyclic group, halogen atom, with more preferably hydrogen atom, alkyl group, halogen atom, furthermore it is a preferably hydrogen atom as  $R_3$ .

preferably, hydrogen atom, alkyl group, alkenyl group, aralkyl group, aryl group, amino group, acyl group, alkoxy carbonyl group, aryloxy carbonyl group, carbonyl amino group, sulfonyl amino group, sulfamoyl group, carbamoyl group, hydroxyl group, cyano group, heterocyclic group, halogen atom,  $R_4$  and  $R_5$  condensing as

環基、ハロゲン原子、 $R_4$  と  $R_5$  が縮合してベンゼン環を形成したものであり、より好ましくは水素原子、アルキル基、ハロゲン原子、 $R_4$  と  $R_5$  が縮合してベンゼン環を形成したものであり、更に好ましくは  $R_4$  と  $R_5$  が縮合してベンゼン環を形成したものである。

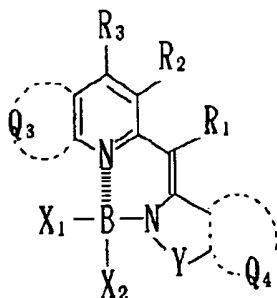
【0031】

一般式(I)で表される化合物のうちより好ましくは一般式(III)で表される化合物である。

【0032】

【化 8】

一般式 (III)



【0033】

(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $X_1$  および  $X_2$  はそれぞれ一般式(II)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。 $Y$  はカルボニル基、スルホ基、スルホニル基またはホスホニル基を表す。 $Q_3$ 、 $Q_4$  はそれぞれ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

【0034】

$Y$  はカルボニル基、スルホニル基またはホスホニル基を表し、好ましくはカルボニル基、スルホニル基である。

【0035】

$Q_3$  は環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Q_3$  が形成する環としては炭化水素環とヘテロ環が挙げられる。

また、これらは単環であってもよいし、さらに他の環と縮合環を形成してもよい。

【0036】

$Q_3$  が形成する炭化水素環は芳香族炭化水素環でも非芳香族炭化水素環でもよく、好ましくは芳香族炭化水素環(好ましくは炭素数 6~30 であ

$R_4$ 、 $R_5$ , being something which formed benzene ring, more preferably hydrogen atom, alkyl group, halogen atom,  $R_4$  and  $R_5$  condensing, being something which formed benzene ring, furthermore the preferably  $R_4$  and  $R_5$  condensing, it is something which formed the benzene ring.

【0031】

It is a compound which is displayed with inside more preferably general formula (III) of compound which is displayed with General Formula (I).

【0032】

[Chemical Formula 8]

【0033】

(In Formula, as for  $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $X_1$  and  $X_2$  those in respective General Formula (II) and being synonymous, also desirable range is similar.  $Y$  displays carbonyl group, sulfo group, sulfonyl group or phosphoryl group.  $Q_3$ 、 $Q_4$  displays atom group which is necessary in order respectively to form ring.)

【0034】

$Y$  displays carbonyl group, sulfonyl group or phosphoryl group, it is a preferably carbonyl group, sulfonyl group.

【0035】

$Q_3$  displays atom group which is necessary in order to form ring can list hydrocarbon ring and heterocyclic ring as ring which  $Q_3$  forms.

In addition, these are good even with monocycle and, furthermore it is possible to form other ring and fused ring.

【0036】

hydrocarbon ring which  $Q_3$  forms with aromatic hydrocarbon ring and is good with nonaromatic hydrocarbon ring, it is a preferably aromatic hydrocarbon ring (With preferably carbon

り、より好ましくは炭素数 6~24、さらに好ましくは炭素数 6~20 であり、特に好ましくはベンゼン環、ナフタレン環であり、最も好ましくはベンゼン環である。)である。

【0037】

Q<sub>3</sub> が形成するヘテロ環は、N、O または S 原子を少なくとも一つを含む 3 ないし 10 員のヘテロ環が好ましく、これらは単環であってもよい、更に他の環と縮合環を形成してもよい。

ヘテロ環として好ましくは、5 ないし 6 員の芳香族ヘテロ環である。

ヘテロ環の具体例としては、例えばチオフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデンなどが挙げられる。

ヘテロ環として好ましくは、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、キノリン、フタラジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、より好ましくはイミダゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、キノリン、チアゾール、オキサゾールであり、更に好ましくは、ピリジン、ピラジンである。

【0038】

Q<sub>3</sub> として好ましくは芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは炭素数 6~20 の芳香族炭化水素環、含窒素芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは、炭素数 6~20 の芳香族炭化水素環であり、特に好ましくはベンゼン、ナフタレンである。

【0039】

Q<sub>4</sub> は環を形成するのに必要な原子群を表し、Q<sub>4</sub> が形成する環としては飽和あるいは不飽和の炭化水素環、飽和あるいは不飽和のヘテロ環が挙げられ、これらは更に他の環と縮合環を形

number 6~30, more preferably carbon number 6~24, furthermore with preferably carbon number 6~20, especially with benzene ring, naphthalene ring, it is a most preferably benzene ring desirably. ).

【0037】

As for heterocyclic ring which Q<sub>3</sub> forms, N, O or S atom 3 or 10 -member where at least one is included heterocyclic ring is desirable, these are good even with monocycle and, furthermore it is possible to form other ring and the fused ring.

It is a aromatic heterocyclic ring of preferably, 5 or 6 members as heterocyclic ring.

As embodiment of heterocyclic ring, you can list for example thiophene, furan, pyrrole, imidazole, pyrazole, pyridine, pyrazine, pyridazine, triazole, triazine, indole, indazole, purine, thiazoline, thiazole, thiadiazole, oxazoline, oxazole, oxadiazole, quinoline, isoquinoline, phthalazine, naphthyridine, quinoxaline, quinazoline, cinnoline, pteridine, acridine phenanthroline, phenazine, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, tetrazaindene etc.

With preferably, pyrrole, imidazole, pyrazole, pyridine, pyrazine, pyridazine, triazole, triazine, indole, indazole, thiadiazole, oxadiazole, quinoline, phthalazine, quinoxaline, quinazoline, cinnoline, thiazole, oxazole, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, with more preferably imidazole, pyridine, pyrazine, pyridazine, quinoline, thiazole, oxazole, furthermore it is a preferably, pyridine, pyrazine as the heterocyclic ring.

【0038】

With preferably aromatic hydrocarbon ring, aromatic heterocyclic ring, with aromatic hydrocarbon ring, nitrogen-containing aromatic heterocyclic ring of more preferably carbon number 6~20, furthermore with the aromatic hydrocarbon ring of preferably, carbon number 6~20, it is a particularly preferably benzene, naphthalene as Q<sub>3</sub>.

【0039】

Q<sub>4</sub> displays atom group which is necessary in order to form ring, heterocyclic ring of hydrocarbon ring, saturated or unsaturated of saturated or unsaturated listing and others, as for these furthermore is good forming other ring and fused

成しても良い。

【0040】

Q<sub>4</sub> が形成する飽和あるいは不飽和の炭化水素環は脂肪族炭化水素環でも芳香族炭化水素環でもよく、好ましくは芳香族炭化水素環(好ましくは炭素数 6~30 であり、より好ましくは炭素数 6~24、さらに好ましくは炭素数 6~20 であり、特に好ましくはベンゼン、ナフタレンであり、最も好ましくはベンゼンである。)である。

【0041】

Q<sub>4</sub> が形成するヘテロ環は、N、O または S 原子を少なくとも一つを含む 3 ないし 10 員のヘテロ環が好ましく、これらは単環であってもよい、更に他の環と縮合環を形成してもよい。

ヘテロ環として好ましくは、芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは 5 ないし 6 員の芳香族ヘテロ環である。

ヘテロ環の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデンなどが挙げられる。

ヘテロ環として好ましくは、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、キノリン、フタラジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、より好ましくはピリジン、ピラジン、ピリダジンであり、更に好ましくは、ピリジンである。

【0042】

Q<sub>4</sub> として好ましくは芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは炭素数 6~20 の芳香族炭化水素環、含窒素芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、ピリジン、ピラジン、ピリダジンであり、特に好ましくは、ベンゼン、ピリジン、ピラジンである。

ring as ring which Q<sub>4</sub> forms.

【0040】

hydrocarbon ring of saturated or unsaturated which Q<sub>4</sub> forms with aliphatic hydrocarbon ring and is good with aromatic hydrocarbon ring, it is a preferably aromatic hydrocarbon ring (With preferably carbon number 6~30, more preferably carbon number 6~24, furthermore with preferably carbon number 6~20, especially with benzene, naphthalene, it is a most preferably benzene desirably.).

【0041】

As for heterocyclic ring which Q<sub>4</sub> forms, N, O or S atom 3 or 10 -member where at least one is included heterocyclic ring is desirable, these are good even with monocycle and, furthermore it is possible to form other ring and the fused ring.

With preferably, aromatic heterocyclic ring, it is a aromatic heterocyclic ring of more preferably 5 or 6 members as heterocyclic ring.

As embodiment of heterocyclic ring, you can list for example pyrrolidine, piperidine, piperazine, morpholine, thiophene, furan, pyrrole, imidazole, pyrazole, pyridine, pyrazine, pyridazine, triazole, triazine, indole, indazole, purine, thiazoline, thiazole, thiadiazole, oxazoline, oxazole, oxadiazole, quinoline, isoquinoline, phthalazine, naphthyridine, quinoxaline, quinazoline, cinnoline, pteridine, acridine, phenanthroline, phenazine, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, tetrazaindene etc.

With preferably, pyrrole, imidazole, pyrazole, pyridine, pyrazine, pyridazine, triazole, triazine, indole, indazole, thiadiazole, oxadiazole, quinoline, phthalazine, quinoxaline, quinazoline, cinnoline, thiazole, oxazole, benzimidazole, benzoxazole, benzothiazole, benzotriazole, with more preferably pyridine, pyrazine, pyridazine, furthermore it is a preferably, pyridine as the heterocyclic ring.

【0042】

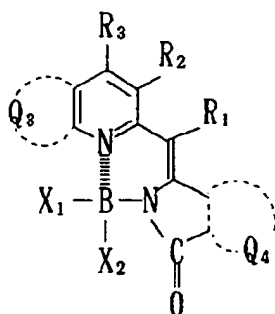
With preferably aromatic hydrocarbon ring, aromatic heterocyclic ring, with aromatic hydrocarbon ring, nitrogen-containing aromatic heterocyclic ring of more preferably carbon number 6~20, furthermore with the preferably, benzene, naphthalene, pyridine, pyrazine, pyridazine, it is a particularly preferably, benzene,

【0043】

一般式(I)で表される化合物のうち更に好ましくは一般式(III-a<sub>1</sub>)、一般式(III-b<sub>1</sub>)で表される化合物である。

【0044】

【化 9】

一般式 (III-a<sub>1</sub>)

【0045】

まず、一般式(III-a<sub>1</sub>)で表される化合物について詳細に説明する。

一般式(III-a<sub>1</sub>)中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、Q<sub>3</sub> および Q<sub>4</sub> はそれぞれ一般式(III)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。

一般式(III-a<sub>1</sub>)で表される化合物のうち好ましくは一般式(III-a<sub>2</sub>)で表される化合物である。

【0046】

【化 10】

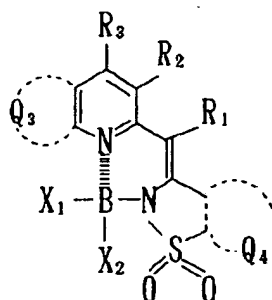
pyridine、 pyrazine as Q<sub>4</sub>.

【0043】

Among compound which are displayed with General Formula (I) furthermore the preferably General Formula (III-a<sub>1</sub>), it is a compound which is displayed with General Formula (III-b<sub>1</sub>).

【0044】

[Chemical Formula 9]

一般式 (III-b<sub>1</sub>)

【0045】

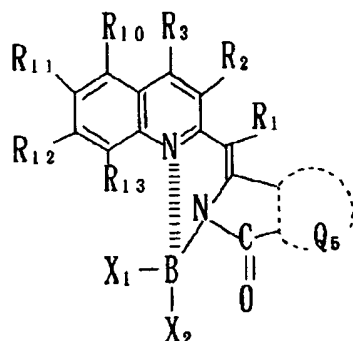
First, you explain in detail concerning compound which is displayed with General Formula (III-a<sub>1</sub>).

In General Formula (III-a<sub>1</sub>), as for R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、Q<sub>3</sub> and Q<sub>4</sub> those in the respective general formula (III) and being synonymous, also desirable range is similar.

It is a compound which is displayed with inside preferably General Formula (III-a<sub>2</sub>) of compound which is displayed with General Formula (III-a<sub>1</sub>).

【0046】

[Chemical Formula 10]

一般式 (III-a<sub>2</sub>)

【0047】

(式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、X<sub>1</sub> および X<sub>2</sub> はそれぞれ一般式(III)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub> および R<sub>13</sub> は水素原子または置換基を表し、置換基としては一般式(I)における R<sub>1</sub> で置換基として挙げたものが適用でき、R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub> および R<sub>13</sub> として好ましくは、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基、アリール基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環、ハロゲン原子であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、ハロゲン原子であり、更に好ましくは水素原子である。Q<sub>5</sub> は芳香族炭化水素環、あるいは芳香族ヘテロ環を表し、好ましくは炭素数 6~20 の芳香族炭化水素環、5 ないし 6 員の芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、ピリジン、ピラジン、ピリダジンであり、更に好ましくは、ベンゼン、ピリジン、ピラジンである。)

【0048】

一般式(III-a<sub>1</sub>)で表される化合物のうちより好ましくは一般式(III-a<sub>3</sub>)で表される化合物である。

【0049】

【化 11】

【0047】

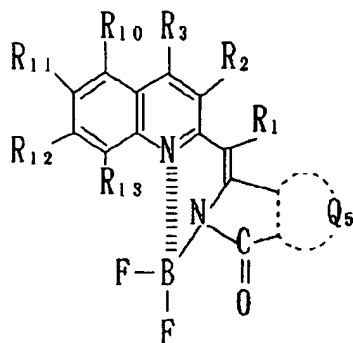
(In Formula, as for R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub> those in respective general formula (III) and being synonymous, also desirable range is similar. R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub> and R<sub>13</sub> to display hydrogen atom or substituent, be able to apply those which you list as substituent with R<sub>1</sub> in General Formula (I) as the substituent, preferably, hydrogen atom, alkyl group, alkenyl group, aralkyl group, aryl group, amino group, acyl group, alkoxy carbonyl group, aryloxy carbonyl group, with carbonyl amino group, sulfonyl amino group, sulfamoyl group, carbamoyl group, hydroxyl group, cyano group, heterocyclic ring, halogen atom, with more preferably hydrogen atom, alkyl group, halogen atom, furthermore it is a preferably hydrogen atom as R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub> and R<sub>13</sub>. Q<sub>5</sub> displays aromatic hydrocarbon ring, or aromatic heterocyclic ring, with aromatic heterocyclic ring of aromatic hydrocarbon ring, 5 or 6 members of preferably carbon number 6~20, with more preferably, benzene, naphthalene, pyridine, pyrazine, pyridazine, furthermore it is a preferably, benzene, pyridine, pyrazine.)

【0048】

It is a compound which is displayed with inside more preferably General Formula (III-a<sub>3</sub>) of compound which is displayed with General Formula (III-a<sub>1</sub>).

【0049】

[Chemical Formula 11]

一般式 (III-a<sub>3</sub>)

【0050】

(式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>、R<sub>13</sub>、および Q<sub>5</sub> はそれぞれ一般式(III-a<sub>2</sub>)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。)

【0051】

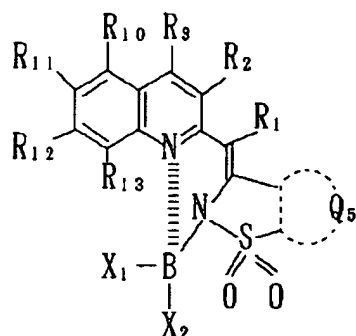
以下に一般式(III-b<sub>1</sub>)で表される化合物について詳細に説明する。

一般式(III-b<sub>1</sub>)中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、Q<sub>3</sub> および Q<sub>4</sub> はそれぞれ一般式(III)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。

一般式(III-b<sub>1</sub>)で表される化合物のうち好ましくは一般式(III-b<sub>2</sub>)で表される化合物である。

【0052】

【化 12】

一般式 (III-b<sub>2</sub>)

【0053】

(式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>、R<sub>13</sub>、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub> および Q<sub>5</sub> はそれぞれ一般式 (III-a<sub>2</sub>) におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。)

【0050】

(In Formula, as for R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>、R<sub>13</sub>、 and Q<sub>5</sub> those in respective General Formula (III-a<sub>2</sub>) and being synonymous, also desirable range is similar. )

【0051】

You explain in detail concerning compound which below is displayed with General Formula (III-b<sub>1</sub> ).

In General Formula (III-b<sub>1</sub> ), as for R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、Q<sub>3</sub> and Q<sub>4</sub> those in the respective general formula (III ) and being synonymous, also desirable range is similar.

It is a compound which is displayed with inside preferably General Formula (III-b<sub>2</sub> ) of compound which is displayed with General Formula (III-b<sub>1</sub> ).

【0052】

【Chemical Formula 12】

【0053】

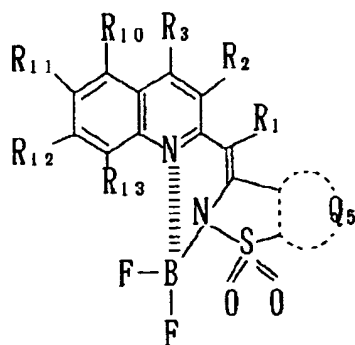
(In Formula, as for R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>、R<sub>13</sub>、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub> and Q<sub>5</sub> those in respective General Formula (III-a<sub>2</sub>) and being synonymous, also desirable range is similar. )

【0054】

一般式(III-b<sub>1</sub>)で表される化合物のうちより好ましくは一般式(III-b<sub>3</sub>)で表される化合物である。

【0055】

【化 13】

一般式 (III-b<sub>3</sub>)

【0056】

(式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>、R<sub>13</sub>、およびQ<sub>5</sub>はそれぞれ一般式(III-a<sub>2</sub>)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。)

【0057】

また、一般式(I)、(II)、(III)、(III-a<sub>1</sub>)、(III-a<sub>2</sub>)、(III-a<sub>3</sub>)、(III-b<sub>1</sub>)、(III-b<sub>2</sub>)または(III-b<sub>3</sub>)で表される化合物は低分子であっても良いし、残基がポリマー主鎖の接続された高分子量化合物(好ましくは質量平均分子量 1000~5000000、より好ましくは 5000~2000000、さらに好ましくは 10000~1000000)もしくは、本発明の化合物主鎖に持つ高分子量化合物(好ましくは質量平均分子量 1000~5000000、より好ましくは 5000~2000000、さらに好ましくは 10000~1000000)であっても良い。

高分子量化合物の場合はホモポリマーであっても良いし、他のポリマーとの共重合体であっても良く、共重合体である場合はランダム共重合体であっても、ブロック共重合体であっても良い。

本発明で用いる化合物としては、好ましくは低分子量化合物である。

また、上記一般式では便宜的に極限構造で表しているがその互変異性体であっても良い。

【0058】

【0054】

It is a compound which is displayed with inside more preferably General Formula (III-b<sub>3</sub>) of compound which is displayed with General Formula (III-b<sub>1</sub>).

【0055】

[Chemical Formula 13]

【0056】

(In Formula, as for R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>、R<sub>13</sub>、 and Q<sub>5</sub> those in respective General Formula (III-a<sub>2</sub>) and being synonymous, also desirable range is similar.)

【0057】

In addition, General Formula (I), (II), (III), (III-a<sub>1</sub>), (III-a<sub>2</sub>), (III-a<sub>3</sub>), (III-b<sub>1</sub>), (III-b<sub>2</sub>) or compound which is displayed with (III-b<sub>3</sub>) is good even with low molecular weight and, the high molecular weight compound where residue is connected polymer main chain (preferably mass average molecular weight 1000~5000000, more preferably 5000~2000000, furthermore preferably 10000~1000000) or, it is good even with high molecular weight compound (preferably mass average molecular weight 1000~5000000, more preferably 5000~2000000, furthermore preferably 10000~1000000) which it has in compound main chain of this invention.

In case of high molecular weight compound it is good even with homopolymer and, it is good even with copolymer of other polymer, when it is a copolymer, with the random copolymer and it is good with block copolymer.

It is a preferably low molecular weight compound as compound which is used with this invention.

In addition, with above-mentioned General Formula you have displayed convention with limiting structure, but it is good even with tautomer.

【0058】



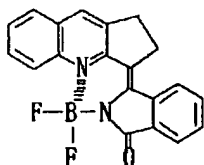
以下に本発明の一般式(I)で表される化合物の具体例を示すが本発明はこれに限定されるものではない。

また、便宜的に以下に示す化合物は極限構造で表しているがその互変異性体であっても良い。

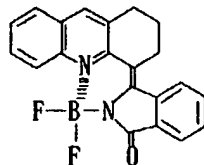
【0059】

【化 14】

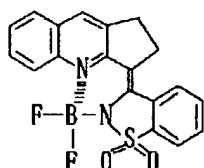
1



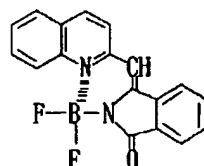
2



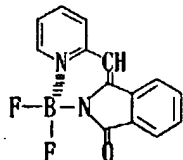
3



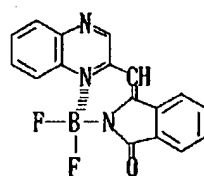
4



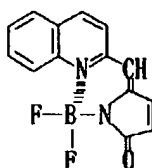
5



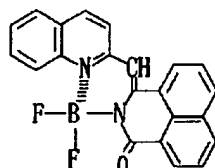
6



7



8



【0060】

【化 15】

embodiment of compound which below is displayed with General Formula (I) of this invention is shown, but this invention is not something which is limited in this.

In addition, you display compound which is shown convention below with the limiting structure, but it is good even with tautomer.

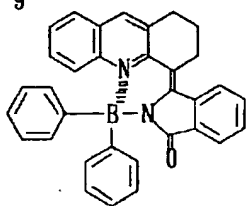
【0059】

[Chemical Formula 14]

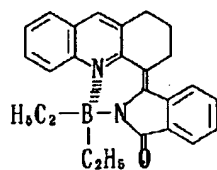
【0060】

[Chemical Formula 15]

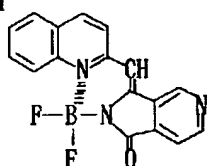
9



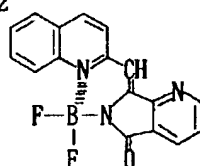
10



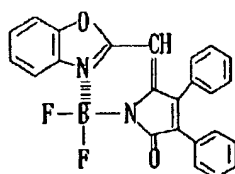
11



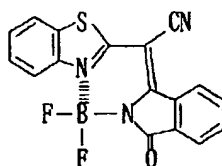
12



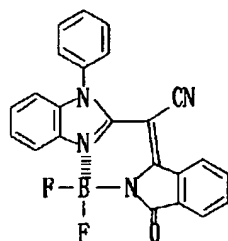
13



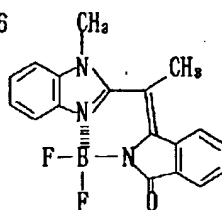
14



15



16



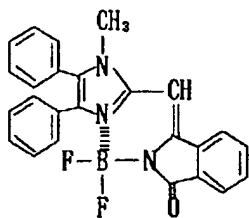
[0061]

[化 16]

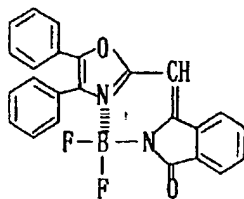
[0061]

[Chemical Formula 16]

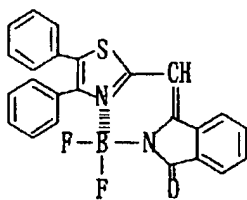
17



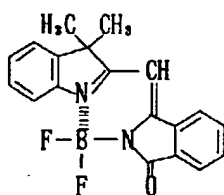
18



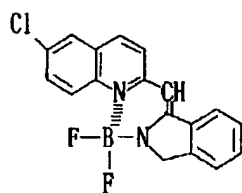
19



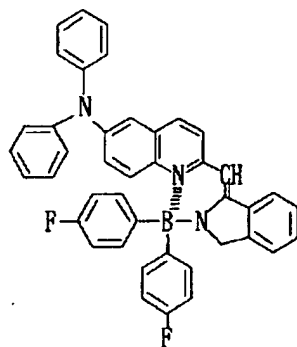
20



21



22



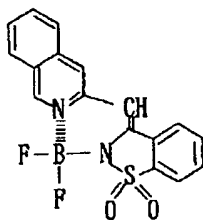
【0062】

【化 17】

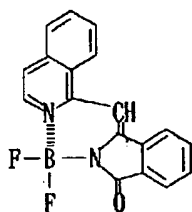
[0062]

[Chemical Formula 17]

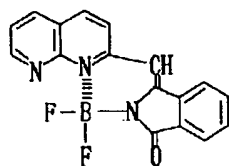
23



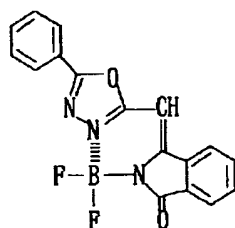
24



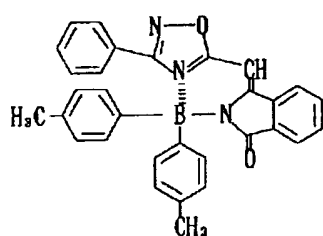
25



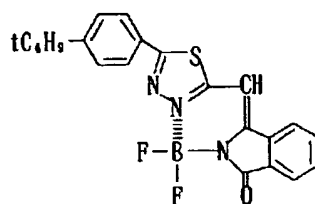
26



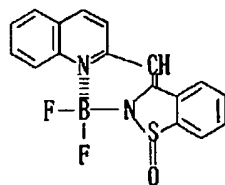
27



28



29



【0063】

一般式(I)で表される化合物は例えば、Z. Chem., 28 巻, 23 頁(1988 年)、特開平 10-287819 の記載の方法等によって合成できる。

また、本発明の一般式(I)で表される化合物の合成法の一例をスキーム 1 に示す。

【0064】

【化 18】

[0063]

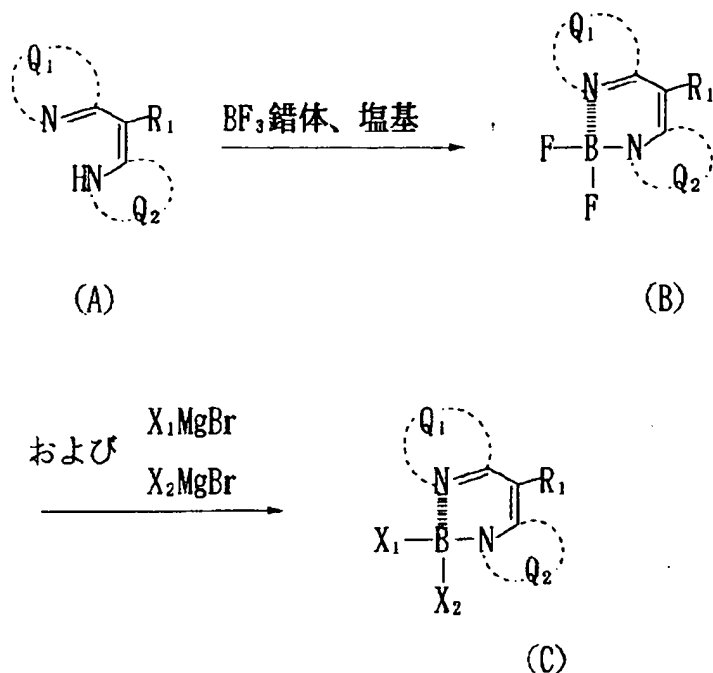
Although for example Z. Chem., Vol.28,23 page (1988), Japan Unexamined Patent Publication Hei 10-287819 it can synthesize compound which is displayed with General Formula (I) with method etc. which is stated.

In addition, one example of synthetic method of compound which is displayed with General Formula (I) of this invention is shown in scheme 1.

[0064]

[Chemical Formula 18]

## スキーム I



【0065】

(式中、 $Q_1$ 、 $Q_2$ 、 $R_1$ 、 $X_1$  および  $X_2$  はそれぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。)

【0066】

化合物(B)は具体的には塩基存在下、(A)と  $\text{BF}_3$  錯体とを反応させることにより合成できる。

塩基としては、有機塩基(例えば有機アミン類、アゾール類等)、無機塩基(例えば、カリウム塩、ナトリウム塩等)のどちらでも良い。

塩基の等量は(A)に対して 1~10 当量であり、より好ましくは、1~5 当量であり、更に好まし 1~2 当量である。

$\text{BF}_3$  錯体としては  $\text{BF}_3$  ジアルキルエーテル錯体(例えば  $\text{BF}_3$  ジメチルエーテル錯体、 $\text{BF}_3$  ジエチルエーテル錯体、 $\text{BF}_3$  tert-ブチルメチルエーテル錯体等)、 $\text{BF}_3$  アルコール錯体(例えば  $\text{BF}_3$  メタノール錯体、 $\text{BF}_3$  n-プロパノール錯体等)、 $\text{BF}_3$  アミン錯体(例えば  $\text{BF}_3$  エチルアミン錯体、 $\text{BF}_3$  ピペリジン錯体等)、 $\text{BF}_3$  カルボン酸錯体(例えば  $\text{BF}_3$  酢酸錯体等)、 $\text{BF}_3$  スルフィド錯体(例えば  $\text{BF}_3$  ジメチルスルフィド錯体等)等があり、好ましくは  $\text{BF}_3$  ジアルキルエーテル錯体であり、更に好ましくは  $\text{BF}_3$  ジエチルエーテル錯体である。

【0065】

(In Formula, as for  $Q_1$ 、 $Q_2$ 、 $R_1$ 、 $X_1$  and  $X_2$  those in respective General Formula (I) and being synonymous, in addition also desirable range is similar.)

【0066】

compound (B) concretely under base existing, (A) with can synthesize  $\text{BF}_3$  complex by reacting.

As base, organic base (for example organic amines, azoles etc), it is good with whichever of inorganic base (for example potassium salt, sodium salt etc).

equivalent of base with 1 - 10 equivalent, with more preferably, 1~5 equivalent, furthermore is 1 - 2 equivalent desirably vis-a-vis (A).

$\text{BF}_3$  dialkyl ether complex (for example  $\text{BF}_3$  dimethyl ether complex,  $\text{BF}_3$  diethyl ether complex,  $\text{BF}_3$  t-butyl methyl ether complex etc),  $\text{BF}_3$  alcohol complex (for example  $\text{BF}_3$  methanol complex,  $\text{BF}_3$  n-propanol complex etc),  $\text{BF}_3$  amine complex (for example  $\text{BF}_3$  ethylamine complex,  $\text{BF}_3$  piperidine complex etc),  $\text{BF}_3$  carboxylic acid complex (for example  $\text{BF}_3$  acetic acid complex etc), there is a  $\text{BF}_3$  sulfides complex (for example  $\text{BF}_3$  dimethyl sulfide complex etc) etc as  $\text{BF}_3$  complex, with preferably  $\text{BF}_3$  dialkyl ether complex, furthermore it is a preferably  $\text{BF}_3$  diethyl ether complex.

溶媒としては、炭化水素類(例えば、ヘキサン、ベンゼン、トルエン、キシレン等がある。)、ニトリル類(例えば、アセトニトリル等がある。)、エーテル類(例えば、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、ジエチルエーテル等がある。)が好ましく、反応温度は特に限定はないが、好ましくは 0~150 deg C であり、より好ましくは、0~100 deg C である。

化合物(C)は具体的には化合物(B)と有機金属との反応によって得られる。

有機金属としてリチウム塩、Grignard 試薬等があり、等量として好ましくは 2~50 当量であり、より好ましくは、2~20 当量であり、更に好ましくは 2~10 等量である。

溶媒としては、炭化水素類(例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン等がある。)、エーテル類(例えば、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、ジエチルエーテル等がある。)が好ましく、反応温度は特に限定はないが、好ましくは 0~150 deg C であり、より好ましくは、0~100 deg C である。)

#### 【0067】

本発明の発光素子は陽極、陰極の一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。

各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

#### 【0068】

陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が 4eV 以上の材料である。

具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ(ITO)等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらと ITO との積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点から ITO

As solvent, hydrocarbons (There is a for example hexane, benzene, toluene, xylene etc. ), nitriles (There is a for example acetonitrile etc. ), ethers (There is a for example tetrahydrofuran, 1, 4- dioxane, diethyl ether etc. ) is desirable, as for reaction temperature is not especially limitation. With preferably 0~150 deg C, it is a more preferably, 0~100 deg C.

compound (C ) compound (B ) with is acquired concretely with reaction with organometal.

There is a lithium salt, Grignard reagent etc as organometal, with preferably 2~50 equivalent , with more preferably, 2~20 equivalent , furthermore it is a preferably 2~10 equivalent as equivalent.

As solvent, hydrocarbons (There is a for example benzene, toluene, xylene etc. ethers (There is a for example tetrahydrofuran, 1, 4- dioxane, diethyl ether etc. ) is desirable, as for reaction temperature is not especially limitation. With preferably 0~150 deg C, it is a more preferably, 0~100 deg C. )

#### 【0067】

light emitting device of this invention with element which formed organic compound thin layer of the plural which includes light emitting layer or light emitting layer between pair of electrodes of the anode, cathode, may possess other hole injection layer, hole transporting layer, electron-injecting layer, electron transporting layer, protective layer etc of light emitting layer, in addition these each layers may be something which has respective other function.

various material can be used to formation of each layer respectively.

#### 【0068】

anode being something which supplies positive hole to hole injection layer, hole transporting layer, light emitting layer etc, metal, alloy, metal oxide, electrically conductive compound, or be able to use these mixture etc, preferably work function is material of 4 eV or more.

Of tin oxide, zinc oxide, indium oxide, indium tin oxide (ITO ) or other electrically conductive metal oxide, or gold, silver, chromium, nickel or other metal, furthermore of these metal and of electrically conductive metal oxide lamination etc of mixture or you can list lamination, copper iodide, copper sulfide or other inorganic electrically conductive substance, polyaniline, polythiophene, polypyrrole or other organic electrically conductive material, and these and ITO as embodiment, with preferably, electrically conductive metal oxide , especially, the ITO is

が好ましい。

陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常 10nm~5  $\mu$ m の範囲のものが好ましく、より好ましくは 50nm~1  $\mu$ m であり、更に好ましくは 100nm~500nm である。

【0069】

陽極は通常、ソーダ石灰ガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。

ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。

また、ソーダ石灰ガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。

基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常 0.2mm 以上、好ましくは 0.7mm 以上のものを用いる。

陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えば ITO の場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法(ゾル-ゲル法など)、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。

陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。

例えば ITO の場合、UV-オゾン処理、酸素プラズマ処理などが効果的である。

【0070】

陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。

陰極の材料としては金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属(例えば Li, Na, K, Cs 等)またはそのフッ化物、酸化物、アルカリ土類金属(例えば Mg, Ca 等)またはそのフッ化物、酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金また

desirable from productivity, high electrical conductivity, transparency or other point.

film thickness of anode is as needed selectable with material, but those of range of usually 10 nm~5  $\mu$ m are desirable, with the more preferably 50 nm~1  $\mu$ m, furthermore it is a preferably 100 nm~500 nm.

【0069】

As for anode it can use those which usually, layer-forming are done on soda lime glass, nonalkaline glass, transparent resin substrate or other.

When glass is used, in order to decrease leaching ion from glass concerning material, nonalkaline glass is used, it is desirable.

In addition, when soda lime glass is used, uses those which administer the silica or other baria coating is desirable.

If thickness of substrate, although mechanical strength is maintained, is the fully, there is not especially restriction. When glass is used, those of usually 0.2 mm or greater, preferably 0.7 mm or greater are used.

It can use to production of anode various methods with material, but in case of for example ITO, electron beam method, sputtering method, resistance heating vapor deposition method, chemical reaction method (sol-gel method etc), film formation it is done with the coating fabric or other method of dispersion of indium tin oxide.

Also it is possible anode to lower drive voltage of element with washing other treatments, to raise light emission efficiency.

In case of for example ITO, UV-ozone treatment, oxygen plasma treatment etc is effective.

【0070】

cathode is chosen being something which supplies electron to the electron-injecting layer, electron transporting layer, light emitting layer etc, considering adhesion and ionization potential, stability etc of electron-injecting layer, electron transporting layer, light emitting layer or other negative electrode and adjacent layers.

metal, alloy, metal oxide, electrically conductive compound, or be able to use these mixture as material of cathode, the alkali metal (for example Li, Na, K, Cs etc) or fluoride, oxide, alkaline earth metal (for example Mg, Ca etc) or that fluoride, oxide, gold, silver, lead, aluminum, sodium-potassium alloy or those mixed metal, lithium-aluminum alloy or those mixed metal, magnesium-silver alloy or be able to list those mixed metal, indium, ytterbium or other rare earth metal etc as

はそれらの混合金属、インジウム、イットリビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が 4eV 以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。

陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常 10nm~5  $\mu$ m の範囲のものが好ましく、より好ましくは 50nm~1  $\mu$ m であり、更に好ましくは 100nm~1  $\mu$ m である。

陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。

さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。

陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百  $\Omega$ /□以下が好ましい。

【0071】

発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよい。

好ましくは発光層に本発明の化合物を含有するものであるが、本発明の化合物の他の発光材料を用いることもできる。

例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタリイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体や遷移金属錯体(例えばトリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(III)などのオルトメタル

embodiment, preferably work function with material of 4 eV or less, more preferably aluminum, lithium-aluminum alloy or those mixed metal, magnesium-silver alloy or they are those mixed metal etc.

film thickness of cathode is as needed selectable with material, but those of range of usually 10 nm~5  $\mu$ m are desirable, with the more preferably 50 nm~1  $\mu$ m, furthermore it is a preferably 100 nm~1  $\mu$ m.

It can use to production of cathode electron beam method, sputtering method, resistance heating vapor deposition method, coating method or other method, metal also vapor deposition to do, simultaneously vapor deposition it is possible two components or more with unit to do.

Furthermore, vapor deposition doing metal of plural simultaneously, also being possible to form alloy electrode, vapor deposition it is possible to do alloy which in addition you adjusted beforehand.

As for sheet resistance of anode and cathode low direction is desirable, several hundred  $\Omega$ /square or below is desirable.

[0071]

If material of light emitting layer, as at time of electric field imparting positive hole can be filled from anode or hole injection layer, hole transporting layer, electron can be filled from cathode or electron-injecting layer, electron transporting layer offering place of recombination of function, positive hole and electron which charge which functioned and was filled and move, is something which can form layer which possesses function which light emitting is done, it is good anything.

It is something which contains compound of this invention in preferably light emitting layer, but it is possible also to use other light-emitting material of compound of the this invention.

metal complex and transition metal complex of for example benzoxazole derivative, benzimidazole derivative, benzothiazole derivative, styryl benzene derivative, polyphenyl derivative, biphenyl butadiene derivative, tetraphenyl butadiene derivative, naphthalimide derivative, coumarin derivative, perylene derivative, perinone derivative, oxadiazole derivative, aldazine derivative, cyclopentadiene derivative, bisstyryl anthracene derivative, quinaclidone derivative, pyrrolo pyridine derivative, thia diazolo pyridine derivative, cyclopentadiene derivative, styryl amine derivative, aromatic dimethylenide compound, 8-quinolinol derivative (for example tris (2-phenyl pyridine) iridium (III) or other ortho metalated complex etc), you can list, polythiophene, polyphenylene, polyphenylene



化錯体等)、希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物等が挙げられる。

発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常  $1\text{ nm} \sim 5\text{ }\mu\text{ m}$  の範囲のものが好ましく、より好ましくは  $5\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{ m}$  であり、更に好ましくは  $10\text{ nm} \sim 500\text{ nm}$  である。

発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、LB法、インクジェット法、印刷法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

【0072】

正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。

その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポリフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー等が挙げられる。

正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常  $1\text{ nm} \sim 5\text{ }\mu\text{ m}$  の範囲のものが好ましく、より好ましくは  $5\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{ m}$  であり、更に好ましくは  $10\text{ nm} \sim 500\text{ nm}$  である。

正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の 1 種または 2 種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法や LB 法、前記正孔注入輸送剤を

vinylene or other polymer compound etc such as various metal complex which are represented in rare earth complex.

film thickness of light emitting layer is not something which especially is limited. Usually, those of range of  $1\text{ nm} \sim 5\text{ }\mu\text{ m}$  are desirable, with the more preferably  $5\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{ m}$ , furthermore it is a preferably  $10\text{ nm} \sim 500\text{ nm}$ .

formation method of light emitting layer is not something which especially is limited. resistance heating evaporation and electron beam, sputtering, molecule lamination method, coating method (spin coating method, casting method, dip coating method etc), it can use LB method, ink jet method, printing method or other method, it is a preferably resistance heating evaporation and a coating method.

【0072】

material of hole injection layer, hole transporting layer something which has possessed any of the function which if electron which was filled from function, transport positive hole function and cathode which fill positive hole from anode barrier is done it should have been.

As embodiment, you can list carbazole derivative, triazole derivative, oxazole derivative, oxadiazole derivative, imidazole derivative, poly aryl alkane derivative, pyrazoline derivative, pyrazolone derivative, phenylenediamine derivative, aryl amine derivative, amino-substituted chalcone derivative, styryl anthracene derivative, fluorenone derivative, hydrazone derivative, stilbene derivative, silazane derivative, aromatic tertiary amine compound, styryl amine compound, aromatic dimethylidene compound, porphyrin compound, poly silane compound, poly (N- vinyl carbazole ) derivative, aniline copolymer, thiophene oligomer, polythiophene or other conductive polymer oligomer etc.

film thickness of hole injection layer, hole transporting layer is not something which especially is limited. Usually, those of range of  $1\text{ nm} \sim 5\text{ }\mu\text{ m}$  are desirable, with the more preferably  $5\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{ m}$ , furthermore it is a preferably  $10\text{ nm} \sim 500\text{ nm}$ .

hole injection layer, hole transporting layer is good even with monolayer structure which consists of the one, two or more kinds of material which description above is done and, it is good even with multilayer structure which consists of multiple layers of same composition or different kind composition.

As formation method of hole injection layer, hole transporting layer, vacuum vapor deposition method and LB

溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印刷法が用いられる。

コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分解することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0073】

電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。

その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントキラノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体等が挙げられる。

電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μmであり、更に好ましくは10nm~500nmである。

電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印刷法などが用いら

method, aforementioned positive hole injection carrier in solvent melting or dispersing, or method which coating it does (spin coating method, casting method, dip coating method etc), it can use ink jet method, printing method.

In case of coating method, with resin component it melts or disassembles, or it to be possible, for example polyvinyl chloride, polycarbonate, polystyrene, polymethylmethacrylate, poly butyl methacrylate, polyester, polysulfone, polyphenylene oxide, polybutadiene, poly (N- vinyl carbazole ), you can list hydrocarbon resin, ketone resin, phenoxy resin, polyamide, ethyl cellulose, vinyl acetate, ABS resin, polyurethane, melamine resin, unsaturated polyester resin, alkyd resin, epoxy resin, silicon resin etc as resin component.

【0073】

material of electron-injecting layer, electron transporting layer any of function which if positive hole which was filled from function, transport electron function and the anode which fill electron from cathode barrier is done something which it has possessed it should have been.

As embodiment, triazole derivative, oxazole derivative, oxadiazole derivative, fluorenone derivative, ane jp7 キラノ di methane derivative, anthrone derivative, biphenyl quinones derivative, thiopyran dioxide derivative, carbodiimide derivative, fluorenylidene methane derivative, di styryl pyrazine derivative, naphthalene perylene or other heterocycle tetracarboxylic acid anhydrous ones, you can list the metal complex and metal phthalocyanine, benzoxazole of phthalocyanine derivative, 8-quinolinol derivative and various metal complex etc which are represented in metal complex which designates benzothiazole as ligand.

film thickness of electron-injecting layer, electron transporting layer is not something which especially is limited. Usually, those of range of 1 nm~5 μm are desirable, with the more preferably 5 nm~1 μm, furthermore it is a preferably 10 nm~500 nm.

electron-injecting layer, electron transporting layer is good even with monolayer structure which consists of the one, two or more kinds of material which description above is done and, it is good even with multilayer structure which consists of multiple layers of same composition or different kind composition.

As formation method of electron-injecting layer, electron transporting layer, vacuum vapor deposition method and LB method, aforementioned electron implantation carrier in solvent melting or dispersing, or method which coating it does (spin coating method, casting method, dip coating method

れる。

コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0074】

保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。

その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>等の金属酸化物、MgF<sub>2</sub>、LiF、AlF<sub>3</sub>、CaF<sub>2</sub>等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。

保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE(分子線エピタキシー)法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法(高周波励起イオンプレーティング法)、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、インクジェット法、印刷法を適用できる。

【0075】

【実施例】

以下に実施例を挙げて本発明の一部を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。

【0076】

実施例1

例示化合物1の合成

【0077】

【化19】

etc), it can use ink jet method, printing method etc.

In case of coating method, with resin component it melts or disperses, or it to be possible, as resin component in case of for example positive hole injection transporting bed it can apply those which were illustrated.

【0074】

If it should have been something which has possessed function where those which promote moisture or oxygen or other element degradation as material of protective layer go into element and control.

As embodiment, copolymer, tetrafluoroethylene of In, Sn, Pb, Au, Cu, Ag, Al, Ti, Ni or other metal, MgO, SiO, SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, GeO, NiO, CaO, BaO, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub> or other metal oxide, MgF<sub>2</sub>, LiF, AlF<sub>3</sub>, CaF<sub>2</sub> or other metal fluoride, polyethylene, polypropylene, polymethylmethacrylate, polyimide, polyurea, polytetrafluoroethylene, poly chlorotrifluoroethylene, poly dichlorodifluoroethylene, chlorotrifluoroethylene and dichlorodifluoroethylene and copolymerizing monomer mixture which includes comonomer of at least 1 kind, moisture-proofing property substance etc of the water-absorbing substance, moisture absorption 0.1 % or less of fluorine containing copolymer, moisture absorption 1 % or more which possesses ring structure in copolymer, copolymerization main chain which is acquired you can list.

Concerning formation method of protective layer there is not especially limitation, for example vacuum vapor deposition method, sputtering method, reactive sputtering method, MBE (molecular beam epitaxy タキシー) method and cluster ion beam method, ion plating method, plasma polymerization method (high frequency excitation ion plating method), can apply plasma CVD method, laser CVD method, thermal CVD method, gas source CVD method, coating method, ink jet method, printing method.

【0075】

[Working Example(s)]

Listing Working Example below, you explain portion of this invention concretely, but this invention is not something which is limited because of this.

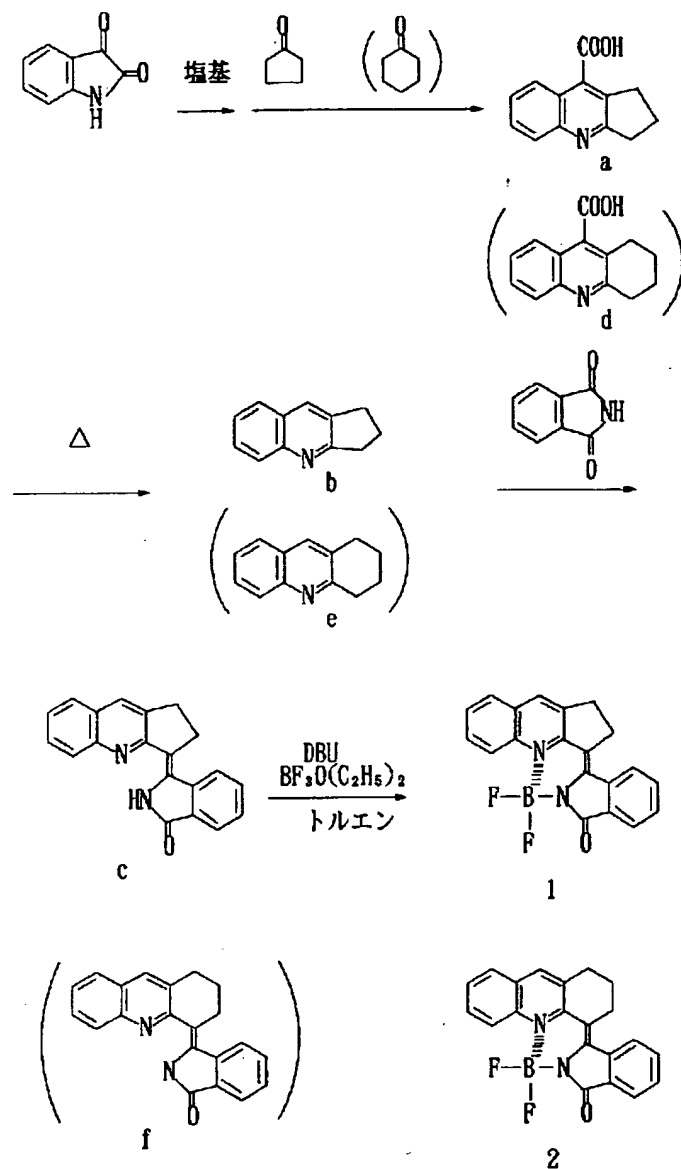
【0076】

Working Example 1

Synthesis of example compound 1

【0077】

[Chemical Formula 19]



【0078】

## 化合物 a の合成法

水酸化カリウム 67.3g(1.2mol)を水 200mL に溶解し、イサチン 58.8g(0.4mol)を少しずつ加えた後、50 deg C で 3.5 時間撹拌した。

その後、ゆっくりとシクロペンタノン 62.2g(0.74mol)を加え、7 時間加熱還流した。

反応溶液を室温まで冷却した後、濃塩酸 120mL、水 600mL 中に反応液を滴下する。

析出した結晶を濾別し乾燥し、白色固体として

【0078】

## synthetic method of compound a

It melted potassium hydroxide 67.3g (1.2 mol) in water 200 ml, after adding isatin 58.8g (0.4 mol) little by little, 3.5 hours it agitated with 50 deg C.

After that, 7 hours heating and refluxing it did including cyclopentanone 62.2g (0.74 mol) slowly.

After cooling reaction solution to room temperature, reaction mixture is dripped in the concentrated hydrochloric acid 120 ml, water 600 ml.

It filtered crystal which it precipitated and dried, 93.1 g

化合物 a を 93.1g 得た。

#### 化合物 b の合成法

化合物 a 93.1g を 500mL の 3 つ口フラスコに入れ、マントルヒーターで外温 300 deg C で激しく攪拌する。

反応の進行とともにフラスコの内容物が溶解した。

約 2 時間攪拌した後、室温まで冷却し、クロロホルム、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で抽出操作を行い、有機相を回収し、硫酸ナトリウムで乾燥、濾過後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(ヘキサン-酢酸エチル、9/1~6/4、vol/vol)により精製操作を行い化合物 b を茶色の液体として 27.7g(イサチンから収率 41%)得た。

#### 化合物 c の合成法

化合物 b 6.2g(36mmol)、フタルイミド 5.3g(40mmol)、塩化亜鉛 11.4g(84mmol)、ジメチルアニリン 90mL を 150 deg C で 2 時間攪拌した後、180 deg C 4 時間攪拌した。

反応液を室温まで冷却し、30%塩酸水溶液を 500mL 加え 90 deg C で 1 時間攪拌した後、室温まで冷却し、析出した固体を濾別した。

得られた固体をクロロホルムに溶解し、水酸化ナトリウム水溶液で有機層を洗い、有機相を回収し、硫酸ナトリウムで乾燥、濾過後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(クロロホルム-メタノール、100/3、vol/vol)により精製操作を行い、クロロホルム、エタノールより再結晶操作を行い、化合物 c を黄色の結晶として 4.9g(収率 45%)得た。

#### 化合物 1 の合成法

化合物 c 0.5g(1.6mmol)、DBU(1,8-ジアザビシクロ[5,4,0]ウンデカ-7-エン) 0.24mL(1.6mmol) トルエン 50mL に BF<sub>3</sub> ジエチルエーテル錯体 0.5mL(3.5mmol)を室温で、滴下した後、4 時間加熱還流した。

反応液を室温まで冷却した後、析出した結晶を濾別した。

クロロホルムにより再結晶操作を 2 回を行い、化合物 1 を 420mg(収率 72%)得た。

融点 305 deg C(分解温度)

【0079】

#### 実施例 2

itacquired compound a as white solid.

#### synthetic method of compound b

500 ml you insert compound a 93.1g in 3 -neck flask, with heating mantle agitate extremely with external temperature 300 deg C.

With advance of reaction contents of flask melted.

Approximately 2 hours after agitating, it cooled to room temperature, did the extraction operation with chloroform, saturated aqueous sodium bicarbonate solution, organic phase it recovered, dried with the sodium sulfate, after filtering, vacuum distillation did solvent, it did purification operation with silica gel column chromatography (hexane-ethylacetate, 9/1~6/4, vol/vol) and 27.7 g (From isatin yield 41%) it acquired with compound b as liquid of brown color.

#### synthetic method of compound c

compound b 6.2g (36 mmol), phthalimide 5.3g (40 mmol), zinc chloride 11.4g (84 mmol), dimethyl aniline 90 ml 2 hours after agitating, 180 deg C 4 hours was agitated with 150 deg C.

reaction mixture was cooled to room temperature, 30% hydrochloric acid solution with 500 ml adding 90 deg C 1 hour after agitating, was cooled to room temperature, solid which was precipitated was filtered.

It melted solid which it acquires in chloroform, washed organic layer with sodium hydroxide water solution, organic phase it recovered, dried with sodium sulfate, after filtering, vacuum distillation did solvent, it did purification operation with the silica gel column chromatography (chloroform-methanol, 100/3, vol/vol), did recrystallization operation from chloroform, ethanol, 4.9 g (yield 45%) it acquired with compound c as crystal of yellow.

#### synthetic method of compound 1

compound c 0.5g (1.6 mmol), DBU (1 and 8 -diazabicyclo {5, 4 and 0} undeca-7-en) BF<sub>3</sub> diethyl ether complex 0.5 ml (3.5 mmol) with room temperature, after dripping, 4 hours heating and refluxing was done in 0.24 ml (1.6 mmol) toluene 50 ml.

After cooling reaction mixture to room temperature, crystal which was precipitated was filtered.

recrystallization operation twice was done with chloroform, compound 1 was acquired 420 mg (yield 72%).

melting point 305 deg C (decomposition temperature)

[0079]

#### Working Example 2

## 化合物 2 の合成

【0080】

## 化合物 e の合成法

化合物 a と同様の方法でシクロペンタノンにシクロヘキサノンに変更することにより、化合物 d を得ることができた。

化合物 d 22.7g (0.1 mol) を 500 mL の 3 つ口フラスコに入れ、マントルヒーターで外温 300 deg C で激しく攪拌する。

反応の進行とともにフラスコの内容物が溶解してくる。

約 2 時間攪拌した後、室温まで冷却し、クロロホルム、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で抽出操作を行い、有機相を回収し、硫酸ナトリウムで乾燥、濾過後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(ヘキサン-酢酸エチル、9/1~7/3、vol/vol)により精製操作を行い化合物 e を茶色の固体として 14.3g (イサチンから収率 78%) 得た。

## 化合物 f の合成法

化合物 e 5.5g (30 mmol)、フタルイミド 4.8g (33 mmol)、塩化亜鉛 9.4g (69 mmol)、ジメチルアニリン 50 mL を 150 deg C で 2 時間攪拌した後、180 deg C 4 時間攪拌した。

反応液を室温まで冷却し、3N 塩酸水溶液を 200 mL 加え 90 deg C で 1 時間攪拌した後、室温まで冷却し、析出した固体を濾別した。

得られた固体を水で洗い、クロロホルム、エタノールより再結晶操作を行い、化合物 f を黄色の結晶として 6.5g (収率 69%) 得た。

## 化合物 2 の合成法

化合物 f 1.0g (3.2 mmol)、DBU 0.48 mL (3.2 mmol) トルエン 100 mL に BF<sub>3</sub> ジエチルエーテル錯体 1.0 mL (7.0 mmol) を室温で、滴下した後、4 時間加熱還流した。

反応液を室温まで冷却した後、析出した結晶を濾別した。

アセトニトリルにより再結晶操作を 2 回を行い、化合物 2 を 500 mg (収率 43%) 得た。

融点 277 deg C (分解温度)

【0081】

実施例 3

## Synthesis of compound 2

【0080】

## synthetic method of compound e

compound d could be acquired by with method which is similar to the compound a modifying cyclopentanone in cyclohexanone.

500 ml you insert compound d 22.7g (0.1 mol) in 3-neck flask, with heating mantle agitate extremely with external temperature 300 deg C.

With advance of reaction contents of flask melts.

Approximately 2 hours after agitating, it cooled to room temperature, did the extraction operation with chloroform, saturated aqueous sodium bicarbonate solution, organic phase it recovered, dried with the sodium sulfate, after filtering, vacuum distillation did solvent, it did purification operation with silica gel column chromatography (hexane-ethylacetate, 9/1~7/3, vol/vol) and 14.3 g (From isatin yield 78%) it acquired with compound e as solid of brown color.

## synthetic method of compound f

compound e 5.5g (30 mmol), phthalimide 4.8g (33 mmol), zinc chloride 9.4g (69 mmol), dimethyl aniline 50 ml 2 hours after agitating, 180 deg C 4 hours was agitated with 150 deg C.

reaction mixture was cooled to room temperature, 3 N hydrochloric acid solution with 200 ml adding 90 deg C 1 hour after agitating, were cooled to room temperature, solid which was precipitated was filtered.

You washed solid which it acquires with water, did recrystallization operation from chloroform, ethanol, 6.5 g (yield 69%) you acquired with compound f as crystal of yellow.

## synthetic method of compound 2

compound f 1.0g (3.2 mmol), BF<sub>3</sub> diethyl ether complex 1.0 ml (7.0 mmol) with room temperature, after dripping, 4 hours heating and refluxing was done in DBU 0.48 ml (3.2 mmol) toluene 100 ml.

After cooling reaction mixture to room temperature, crystal which was precipitated was filtered.

recrystallization operation twice was done with acetonitrile, compound 2 was acquired 500 mg (yield 43%).

melting point 277 deg C (decomposition temperature)

【0081】

Working Example 3

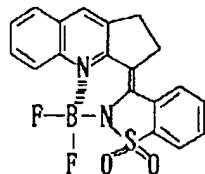
## 化合物 3 の合成

[0082]

## 化合物 g の合成法

[0083]

【化 20】



8

[0084]

化合物 b6.76g(40mmol)、サッカリン 8.05g(44mmol)、塩化亜鉛 12.5g(91mmol)、ジメチルアニリン 70mL を 150 deg C で 2 時間攪拌した後、180 deg C 5 時間攪拌した。

反応液を室温まで冷却し、3N 塩酸水溶液を 300mL 加え 90 deg C で 1 時間攪拌した後、室温まで冷却し、析出した固体を濾別し、化合物 g を赤色の結晶として 3.5g(収率 26%)得た。

## 化合物 3 の合成法

化合物 g 1.0g(3.0mmol)、DBU 0.45mL(3.0mmol) トルエン 100mL に BF<sub>3</sub> ジエチルエーテル錯体 0.76mL(6.0mmol)を室温で、滴下した後、5 時間加熱還流した。

反応液を室温まで冷却した後、析出した結晶を濾別した。

アセトニトリルにより再結晶操作を 2 回行い、化合物 3 を 200mg(収率 18%)得た。

融点 317 deg C(分解温度)

[0085]

## 実施例 4

## 発光素子作製評価

25mm×25mm×0.7mm のガラス基板上に ITO を 150nm の厚さで製膜したものを透明支持基板とした。

この透明支持基板をエッチング、洗浄後、ポリ(N-ビニルカルbazol)40mg、PBD(2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール)12mg、表 1 記載の化合物 0.5mg を 1,2-ジクロロエタン 3ml に溶解し、洗浄した

## Synthesis of compound 3

[0082]

## synthetic method of compound g

[0083]

[Chemical Formula 20]

[0084]

compound b6.76g (40 mmol), saccharin 8.05g (44 mmol), zinc chloride 12.5g (91 mmol), dimethyl aniline 70 ml 2 hours after agitating, 180 deg C 5 hours was agitated with 150 deg C.

It cooled reaction mixture to room temperature, with 300 ml adding 90 deg C 1 hour after agitating, it cooled 3 Nhydrochloric acid solution to room temperature, it filtered the solid which was precipitated, 3.5 g (yield 26%) it acquired with compound g as crystal of red color.

## synthetic method of compound 3

compound g 1.0g (3.0 mmol), BF<sub>3</sub> diethyl ether complex 0.76 ml (6.0 mmol) with room temperature, after dripping, 5 hours heating and refluxing wasdone in DBU 0.45 ml (3.0 mmol) toluene 100 ml.

After cooling reaction mixture to room temperature, crystal which was precipitated was filtered.

recrystallization operation twice was done with acetonitrile, compound 3 was acquired 200 mg (yield 18%).

melting point 317 deg C (decomposition temperature)

[0085]

## Working Example 4

## light emitting device production evaluation

On glass substrate of 25 mm X 25 mm X 0.7 mm ITO those which film manufacture are done were designated as transparent supporting substrate with thickness of 150 nm.

This transparent supporting substrate after etching, washing, poly (N- vinyl carbazole) 40 mg, PBD (2 - (4 -biphenyl yl) - 5 - (4 -t- butyl phenyl) - 1, 3 and 4 -oxadiazole) it melted the compound 0.5 mg which is stated in 12 mg, Table 1 in 1 and 2 -dichloroethane 3 ml, spin coating it didon ITO substrate

ITO 基板上にスパインコートした。

生成した有機薄膜の膜厚は、約 120nm であった。

有機薄膜上にパターニングしたマスク(発光面積が 4mm×5mm となるマスク)を設置し、蒸着装置内でマグネシウム:銀=10:1 を 50nm 共蒸着した後、銀 50nm を蒸着した。

東陽テクニカ製ソースメジャーユニット 2400 型を用いて、直流定電圧を発光素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計 BM-8、発光波長、を浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザ PMA-11 を用いて測定した。

その結果を表 1 に示す。

【0086】

【表 1】

表 1

番号	化合物	最高輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	発光波長 $\lambda_{max}$ (nm)	半値幅 (nm)	備考
1	Zn(OXD) <sub>2</sub>	410	475	112	比較例
2	化合物 1	528	479	56	本発明
3	化合物 2	320	455	70	本発明
4	化合物 3	551	468	55	本発明

【0087】

表 1 の結果から分かるように本発明の化合物はドーパ色素として機能し、比較化合物と比べ、半値幅の狭いシャープな発光を有していることが分かった。

【0088】

#### 実施例 5

実施例 4 と同様に ITO 基板をエッチング、洗浄後、TPD(N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニルベンジジン)約 40nm、表 2 記載化合物および Zn(OXD)<sub>2</sub> をそれぞれ蒸着速度 0.004nm/秒、0.4nm/秒で膜厚約 60nm となるように 10<sup>-3</sup>~10<sup>-4</sup>Pa の真空中で、基板温度室温の条件下蒸着した。

which was washed.

film thickness of organic thin film which it forms was approximately 120 nm.

mask (mask where light-emitting surface area becomes 4 mm X 5 mm ) which patterning is done was installed on organic thin film, 50 nm codeposition after doing magnesium: silver=10:1, silver 50 nm vapor deposition was done inside the vapor deposition equipment.

Making use of Toyo Technica make source measure unit 2400 type, imparting it did the direct current constant voltage in light emitting device and light emitting did, brightness meter BM-8、light emitting wave length of Topcon corporation, it measured brightness making use of Hamamatsu Photonics K.K. (DB 69-058-7670 ) supplied spectrum analyzer PMA-11.

Result is shown in Table 1.

[0086]

[Table 1]

【0087】

As understood from result of Table 1, compound of this invention functions as dope dye, has possessed sharp light emitting where width at half height is narrow in comparison with comparative compound, understood .

【0088】

#### Working Example 5

In same way as Working Example 4 ITO substrate after etching、washing, TPD (N, N'-bis (3 -methylphenyl ) -N, N'-biphenyl benzidine ) approximately 40 nm、Table 2 statement compound and Zn (OXD ) <sub>2</sub> was done way it becomes film thickness approximately 60 nm with therespective vapor deposition rate 0.004 nm/sec、0.4 nm/sec, way 10 <sup>-3</sup>~10 <sup>-4</sup>Pa in vacuum, vapor deposition under the condition of substrate temperature room temperature.

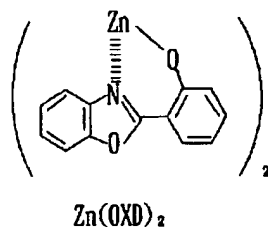


共蒸着した。

次いで実施例 1 と同様に陰極を蒸着し、発光素子を作製した。

【0089】

【化 21】



【0090】

【表 2】

表 2

番号	ホスト 材料	ドーブ 材料	最高輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	発光波長 λ <sub>max</sub> (nm)	半値幅 (nm)	備考
1	Zn(OXD) <sub>2</sub>	なし	6 2 0	4 7 5	1 1 0	比較例
2	Zn(OXD) <sub>2</sub>	化合物 1	2 8 0 0	4 8 4	7 0	本発明
3	Zn(OXD) <sub>2</sub>	化合物 2	1 6 1 0	4 7 6	9 0	本発明
4	Zn(OXD) <sub>2</sub>	化合物 3	2 5 3 0	4 7 5	7 5	本発明

【0091】

表 2 の結果から明らかなように、本発明の化合物を用いた素子では、蒸着方式でも本発明の化合物をドーブすることにより半値幅の狭いシャープな発光が得られ、また、発光効率が向上することが分かった。

【0092】

【発明の効果】

本発明により、半値幅が狭く、色純度が高く、高輝度、高効率の発光が可能な発光素子が得られる。

また、通常輝度の低い塗布方式でも良好な発光特性が得られ、製造コスト面等で有利な素子作製が可能となる。

codeposition it did.

Next, cathode vapor deposition was done in same way as Working Example 1, the light emitting device was produced.

[0089]

[Chemical Formula 21]

[0090]

[Table 2]

[0091]

As been clear from result of Table 2, with element which uses the compound of this invention, sharp light emitting where width at half height is narrow by dope doing compound of this invention even with vapor deposition system was acquired, in addition, light emission efficiency improves understood.

[0092]

[Effects of the Invention]

With this invention, width at half height is narrow, color purity is high, light emitting device where light emitting of high brightness, high efficiency is possible is acquired.

In addition, satisfactory light emitting quality is acquired even with the coating system where usually brightness is low, beneficial element production becomes possible in production cost aspect etc.



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-294851

(P2001-294851A)

(43) 公開日 平成13年10月23日 (2001. 10. 23)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テームコード* (参考)
C 0 9 K 11/06	6 6 0	C 0 9 K 11/06	6 6 0 3 K 0 0 7
C 0 7 F 5/02		C 0 7 F 5/02	D 4 H 0 4 8
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 19 頁)

(21) 出願番号 特願2000-111014(P2000-111014)

(22) 出願日 平成12年4月12日 (2000. 4. 12)

(71) 出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社

神奈川県南足柄市中沼210番地

(72) 発明者 柳 輝一

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真  
フイルム株式会社内

(74) 代理人 100105647

弁理士 小栗 昌平 (外4名)

Fターム(参考) 3K007 AB04 AB18 BA01 DA02

4H048 AA03 AB92 VA11 VA20 VA32

VA42 VA75 VA77 VB10

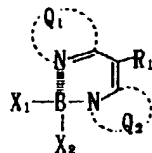
(54) 【発明の名称】 新規アゾールホウ素化合物、発光素子材料およびそれを使用した発光素子

(57) 【要約】

【課題】強度が強く、半値幅の狭い蛍光を発する化合物  
およびそれを用いた発光素子を提供する。【解決手段】下記の一般式 ( I ) で表される化合物また  
はその互変異性体を用いる。

【化1】

一般式 ( I )



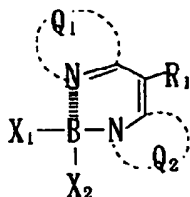
式中、 $R_1$  は水素原子または置換基を表す。 $X_1$  および  
 $X_2$  はそれぞれハロゲン原子、アリール基、脂肪族炭化  
 水素基などを表す。 $Q_1$ 、 $Q_2$  はそれぞれ含窒素ヘテロ  
 環を形成するのに必要な原子群を表すが、同時にピロー  
 ル環であることはない。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(I)で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材料。

## 【化1】

## 一般式(I)

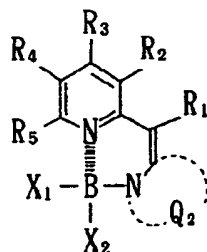


(式中、 $R_1$  は水素原子または置換基を表す。 $X_1$  および  $X_2$  はそれぞれハロゲン原子、カルボキシラート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 $X_1$  と  $X_2$  は連結してもよい。 $Q_1$  は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。 $Q_2$  は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。但し、 $Q_1$ 、 $Q_2$  が同時にピロール環であることはない。)

【請求項2】 下記一般式(II)で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材料。

## 【化2】

## 一般式(II)

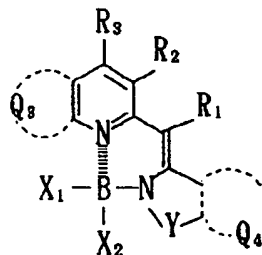


(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  および  $R_5$  はそれぞれ水素原子または置換基を表し、可能な場合は互いが連結して環を形成してもよい。 $X_1$  および  $X_2$  はそれぞれハロゲン原子、カルボキシラート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 $X_1$  と  $X_2$  は連結してもよい。 $Q_2$  は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

【請求項3】 下記一般式(III)で表される化合物またはその互変異性体。

## 【化3】

## 一般式(III)



(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$  はそれぞれ水素原子または置換基を表し、可能な場合は互いが連結して環を形成してもよい。 $X_1$  および  $X_2$  はそれぞれハロゲン原子、カルボキシラート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 $X_1$  と  $X_2$  は連結してもよい。 $Y$  はカルボニル基、スルホ基、スルホニル基またはホスホニル基を表す。 $Q_3$ 、 $Q_4$  は環を形成するのに必要な原子群を表す。)

【請求項4】 一般式(III)で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材料。

【請求項5】 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が請求項1ないし4記載の一般式(I)、(II)、もしくは(III)で表される化合物またはその互変異性体を少なくとも1種含有する層であることを特徴とする発光素子。

【請求項6】 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が請求項1ないし4記載の一般式(I)、(II)、もしくは(III)で表される化合物またはその互変異性体の少なくとも一種をポリマーに分散した層であることを特徴とする発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明はフィルター用染料、色変換フィルター、写真感光材料染料、増感色素、パルプ染色用染料、レーザー色素、医療診断用蛍光素剤、発光素子用材料等に用いるに適した化合物およびそれらを用いた発光素子に関するものであり、詳しくは表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、標識、看板、インテリア等の分野に好適に使用できる発光素子材料および高輝度の発光素子に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】有機物質を使用した発光素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視され、多くの開発が行われている。一般に発光素子は、発光層及び該層を挟んだ一对の対向電極から構成されている。発光は、両電極間に電界が印加されると、

陰極から電子が注入され、陽極から正孔が注入される。更に、この電子と正孔が発光層において再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

【0003】従来の発光素子は、駆動電圧が高く、発光輝度や発光効率も低かった。また、特性劣化も著しく実用化には至っていない。近年、10V以下の低電圧で発光する高い蛍光量子効率を持った有機化合物を含有した薄膜を積層した発光素子が報告され（アプライド フィジックス レターズ、51巻、913頁、1987年）、関心を集めている。この方法は、金属キレート錯体、蛍光帯層、アミン化合物を正孔注入層に使用して、高輝度の緑色発光を得ており、6～7Vの直流電圧で輝度は数1000cd/m<sup>2</sup>に達している。しかしながら実用的な素子考えた場合、更なる高輝度化、高効率発光素子の開発が望まれている。また、フルカラーディスプレイ、光源としての利用を考えた場合、実用上は三原色あるいは白色を出す必要がある。上記の素子は発光材料として8-キノリノールのAl錯体（Alq）を用いており、発光色は緑色であり、他の発光色の発光素子の開発が望まれている。これまで緑色以外に発光する発光材料が種々開発されているものの発光輝度、発光効率が低い、耐久性が低いなどの問題があり、実用に供し得なかった。

【0004】一方、発光素子において高輝度発光を実現しているものは有機物質を真空蒸着によって積層している素子であるが、製造工程の簡略化、加工性、大面積化等の観点から塗布方式による素子作製が望ましい。しかしながら、従来の塗布方式で作製した素子では発光輝度、発光効率の点で蒸着方式で作製した素子に劣っており、高輝度、高効率発光化が大きな課題となっていた。また、有機低分子化合物を有機ポリマー媒体に分散して塗布した素子では、長時間発光させた場合有機低分子化合物が凝集するなどの原因により均質な面状発光が難しいといった課題があった。

【0005】また、近年、フィルター用染料、色変換フィルター、写真感光材料染料、増感色素、バルブ染色用染料、レーザー色素、医療診断用蛍光薬剤、発光素子用材料等に蛍光を有する材料が種々用いられ、その需要が高まっているが、特に有機発光素子をフルカラーディスプレイへと適用することが活発に検討されている。高性能フルカラーディスプレイを開発するためには、青、緑、赤、それぞれ発光の色純度を高くする必要がある。しかしながらAlqに代表される発光材料はブロードな発光を有するものが多く、蛍光の半値幅が狭く、且つ強度の強い材料の開発が望まれていた。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の第一の目的は強度が強く、半値幅の狭い蛍光を発する化合物を提供することにある。本発明の第二の目的は強度が強く、半値

幅の狭い蛍光を発する発光素子材料、発光素子を提供することにある。

【0007】

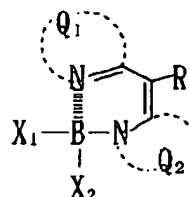
【課題を解決するための手段】この課題は下記手段によって達成された。

(1) 下記一般式(I)で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材料。

【0008】

【化4】

一般式(I)



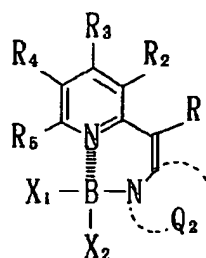
【0009】(式中、R<sub>1</sub> は水素原子または置換基を表す。X<sub>1</sub> およびX<sub>2</sub> はそれぞれハロゲン原子、カルボキシラート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。X<sub>1</sub> とX<sub>2</sub> は連結してもよい。Q<sub>1</sub> は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。Q<sub>2</sub> は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。但し、Q<sub>1</sub>、Q<sub>2</sub> が同時にピロール環であることはない。)

(2) 下記一般式(II)で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材料。

【0010】

【化5】

一般式(II)



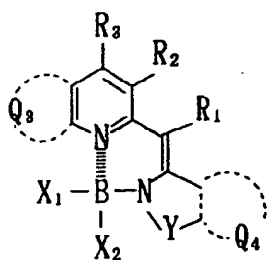
【0011】(式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub> およびR<sub>5</sub> は水素原子または置換基を表し、可能な場合は互いが連結して環を形成してもよい。X<sub>1</sub> およびX<sub>2</sub> はそれぞれハロゲン原子、カルボキシラート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。X<sub>1</sub> とX<sub>2</sub> は連結してもよい。Q<sub>2</sub> は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

(3) 下記一般式(III)で表される化合物またはその互変異性体。

【0012】

【化6】

## 一般式 (III)



【0013】(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$  はそれぞれ水素原子または置換基を表し、可能な場合は互いが連結して環を形成してもよい。 $X_1$  および  $X_2$  はそれぞれハロゲン原子、カルボキシラート基、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 $X_1$  と  $X_2$  は連結してもよい。 $Y$  はカルボニル基、スルホ基、スルホニル基またはホスホニル基を表す。)

(4) 上記一般式 (III) で表される化合物またはその互変異性体であることを特徴とする発光素子材料。

(5) 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が (1) ないし (4) 記載の一般式 (I)、

(II)、もしくは (III) で表される化合物またはその互変異性体を少なくとも1種含有する層であることを特徴とする発光素子。

(6) 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が (1) ないし (4) 記載の一般式 (I)、

(II)、もしくは (III) で表される化合物またはその互変異性体を少なくとも一種ポリマーに分散した層であることを特徴とする発光素子。

## 【0014】

【発明の実施の形態】まず、本発明の一般式 (I) で表される化合物について詳細に説明する。 $R_1$  は水素原子または置換基を表し、 $R_1$  で表される置換基としては、例えばアルキル基 (好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8であり、例えばメチル、エチル、*iso*-プロピル、*tert*-ブチル、*n*-オクチル、*n*-デシル、*n*-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基 (好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基 (好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基 (好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは

炭素数6~12であり、例えばフェニル、*p*-メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。)、アミノ基 (好ましくは炭素数0~20、より好ましくは炭素数0~10、特に好ましくは炭素数0~6であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジフェニルアミノ、ジベンジルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシ基 (好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシなどが挙げられる。)、アリールオキシ基 (好ましくは炭素数6~20、より好ましくは炭素数6~16、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。)、アシル基 (好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ヒパロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基 (好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニル基 (好ましくは炭素数7~20、より好ましくは炭素数7~16、特に好ましくは炭素数7~10であり、

【0015】例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基 (好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基 (好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基 (好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニルアミノ基 (好ましくは炭素数7~20、より好ましくは炭素数7~16、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基 (好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基 (好ましくは炭素数0~20、より好ましくは炭素数0~16、特に好ましくは炭素数0~12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、

【0016】カルバモイル基 (好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばカルバモイル、メチルカル

バモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6~20、より好ましくは炭素数6~16、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、カルバゾリル、アゼピニルなどが挙げられる。)、シリル基(好ましくは、炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは、炭素数3~24であり、例えば、トリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。))などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。また、置換基が二つ以上ある場合は、同じでも異なってもよい。また、可能な場合には互いに連結して環を形成してもよい。

【0017】置換基として好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基、アリール基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環基または置換基が連結して縮合環を形成したものであり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アラルキル基、アリール基、アミノ基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環基、置換基が連結してベンゼン環を形成したものであり、更に好ましくはアルキル基、アラル

キル基、アリール基、アミノ基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環基、置換基が連結してベンゼン環を形成したものである。

【0018】 $R_1$ として好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、シアノ基、ヘテロ環基、 $Q_1$ と連結して環を形成したものであり、より好ましくは水素原子、炭素数1~8のアルキル基、 $Q_1$ と連結して環を形成したものであり、更に好ましくは水素原子、メチル基、 $Q_1$ と連結して環を形成したものであり、特に好ましくは、水素原子、 $Q_1$ と連結して5または6員環を形成したものである。

【0019】 $X_1$ 、 $X_2$ で表されるハロゲン原子は、例えば塩素原子、臭素原子、フッ素原子が挙げられ、好ましくは塩素原子、フッ素原子であり、より好ましくはフッ素原子である。 $X_1$ 、 $X_2$ で表されるカルボキシラート基は、例えばアルキルカルボキシラート(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、更に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメチルカルボキシラート、エチルカルボキシラートなどが挙げられる。)、アリールカルボキシラート(好ましくは炭素数7~20、より好ましくは炭素数7~16、更に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニルカルボキシラート、ナフチルカルボキシラートなどが挙げられる。)、ヘテロ環カルボキシラート(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばピリジルカルボキシラート、キノリルカルボキシラートなどが挙げられる。)や、 $X_1$ と $X_2$ が連結したジカルボキシラート(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、更に好ましくは炭素数2~12であり、例えばオギザレート、マロネート、サクシネートなどが挙げられる。)などが挙げられ、好ましくはアルキルカルボキシラートまたは $X_1$ と $X_2$ が連結したジカルボキシラートであり、より好ましくは $X_1$ と $X_2$ が連結したジカルボキシラートであり、更に好ましくはオギザレートである。

【0020】 $X_1$ 、 $X_2$ で表される脂肪族炭化水素基は、直鎖、分岐または環状のアルキル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、更に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメチル、エチル、iso-プロピル、tert-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、更に好ましくは炭素数2~12であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、更に好ましくは炭素数2~12であり、例えば

プロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)であり、好ましくはアルキル基、アルケニル基であり、より好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、アリル基である。

【0021】 $X_1$ 、 $X_2$  で表されるアリール基としては、好ましくは炭素数6~30の単環または二環のアリール基(例えばフェニル、ナフチルなどが挙げられる。)であり、より好ましくは炭素数6~20のフェニル基、更に好ましくは炭素数6~12のフェニル基である。

【0022】 $X_1$ 、 $X_2$  で表されるヘテロ環は、N、OまたはS原子を少なくとも一つを含む3ないし10員の飽和もしくは不飽和のヘテロ環であり、これらは単環であってもよいし、更に他の環と縮合環を形成してもよい。ヘテロ環として好ましくは、5ないし6員の芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは窒素原子を含む5ないし6員の芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは窒素原子を1ないし2原子含む5ないし6員の芳香族ヘテロ環である。ヘテロ環の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ビリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、アテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデンなどが挙げられる。ヘテロ環として好ましくは、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ビリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、キノリン、フタラジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、テトラゾール、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、より好ましくはイミダゾール、ビリジン、キノリン、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、更に好ましくは、ビリジン、キノリンである。

【0023】 $X_1$ 、 $X_2$  で表されるハロゲン原子、カルボキシラート基、脂肪酸炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基は同一または互いに異なってもよい。また、可能な場合には更に置換基を有してもよく、置換基としては一般式(I)における $R_1$ で挙げたものが適用できる。

【0024】 $X_1$ 、 $X_2$  として好ましくはハロゲン原子、アリール基、脂肪酸炭化水素基であり、より好まし

くは塩素原子、フッ素原子、炭素数6~20のアリール基、炭素数1~12のアルキル基であり、更に好ましくはフッ素原子、フェニル基、p-フルオロフェニル基、メチル基、エチル基であり、特に好ましくはフッ素原子である。

【0025】 $Q_1$  は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Q_1$  で表される含窒素ヘテロ環は3ないし、10員の含窒素ヘテロ環であり、これらは単環であってもよいし、更に他の環と縮合環を形成してもよい。含窒素ヘテロ環として好ましくは、5ないし6員の含窒素芳香族ヘテロ環である。ヘテロ環の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ビリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、アテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデンなどが挙げられる。ヘテロ環として好ましくは、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ビリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、キノリン、フタラジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、テトラゾール、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、より好ましくはイミダゾール、ビリジン、キノリン、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、更に好ましくは、ビリジン、キノリンである。

【0026】 $Q_2$  は含窒素ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Q_2$  が形成する環としては飽和あるいは不飽和のヘテロ環が挙げられ、これらは単環であってもよいし、更に他の環と縮合環を形成してもよい。 $Q_2$  が形成する環として好ましくは3ないし10員のヘテロ環であり、より好ましくは4ないし7員のヘテロ環であり、更に好ましくは5ないし6員のヘテロ環であり、特に好ましくは5ないし6員の芳香族ヘテロ環である。ヘテロ環の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ビリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、アテリジン、アクリ



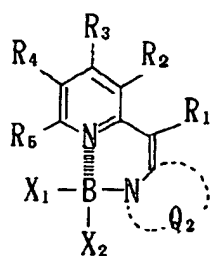
ジン フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、イソインドリノン、ベンズイソチアゾールジオキシドなどが挙げられる。ヘテロ環として好ましくは、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、キノリン、フタラジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、テトラゾール、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、イソインドリノン、ベンズイソチアゾールジオキシドであり、より好ましくはイミダゾール、ピリジン、キノリン、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、イソインドリノン、ベンズイソチアゾールジオキシドであり、更に好ましくは、ピリジン、キノリン、イソインドリノン、ベンズイソチアゾールジオキシドであり、特に好ましくは、イソインドリノン、ベンズイソチアゾールジオキシドである。

【0027】一般式 (I) で表される化合物のうち好ましくは一般式 (II) で表される化合物である。

【0028】

【化7】

一般式 (II)



【0029】(式中、 $R_1$ 、 $X_1$ 、 $X_2$  および  $Q_2$  はそれぞれ一般式 (I) におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  および  $R_5$  はそれぞれ水素原子または置換基を表し、可能な場合は互いが連結して環を形成してもよい。)

【0030】 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  または  $R_5$  で表される置換基は一般式 (I) における  $R_1$  の置換基として挙げたものが適用できる。 $R_2$  として好ましくは水素原子、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基、アリール基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環基、ハロゲン原子、 $R_1$  と連結して環を形成したものであり、より好ましくは水素原子、アルキル基、ハロゲン原子、 $R_1$  と連結して環を形成したものであり、更に好ましくは水素原子、

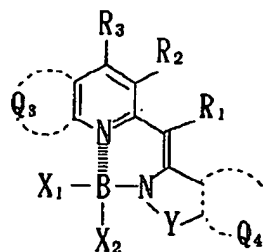
$R_1$  と連結して環を形成したものである。 $R_3$  として好ましくは、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基、アリール基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環基、ハロゲン原子であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、ハロゲン原子であり、更に好ましくは水素原子である。 $R_4$ 、 $R_5$  として好ましくは、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基、アリール基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環基、ハロゲン原子、 $R_4$  と  $R_5$  が縮合してベンゼン環を形成したものであり、より好ましくは水素原子、アルキル基、ハロゲン原子、 $R_4$  と  $R_5$  が縮合してベンゼン環を形成したものであり、更に好ましくは  $R_4$  と  $R_5$  が縮合してベンゼン環を形成したものである。

【0031】一般式 (I) で表される化合物のうちより好ましくは一般式 (III) で表される化合物である。

【0032】

【化8】

一般式 (III)



【0033】(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $X_1$  および  $X_2$  はそれぞれ一般式 (II) におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。 $Y$  はカルボニル基、スルホ基、スルホニル基またはホスホニル基を表す。 $Q_3$ 、 $Q_4$  はそれぞれ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

【0034】 $Y$  はカルボニル基、スルホニル基またはホスホニル基を表し、好ましくはカルボニル基、スルホニル基である。

【0035】 $Q_3$  は環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Q_3$  が形成する環としては炭化水素環とヘテロ環が挙げられる。また、これらは単環であってもよいし、さらに他の環と縮合環を形成してもよい。

【0036】 $Q_3$  が形成する炭化水素環は芳香族炭化水素環でも非芳香族炭化水素環でもよく、好ましくは芳香族炭化水素環 (好ましくは炭素数 6~30 であり、より好ましくは炭素数 6~24、さらに好ましくは炭素数 6

～20であり、特に好ましくはベンゼン環、ナフタレン環であり、最も好ましくはベンゼン環である。)である。

【0037】 $Q_3$  が形成するヘテロ環は、N、OまたはS原子を少なくとも一つを含む3ないし10員のヘテロ環が好ましく、これらは単環であってもよいし、更に他の環と縮合環を形成してもよい。ヘテロ環として好ましくは、5ないし6員の芳香族ヘテロ環である。ヘテロ環の具体例としては、例えばチオフエン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、アテリジン、アクリジン フェナントロリン、フェナジン、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデンなどが挙げられる。ヘテロ環として好ましくは、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、キノリン、フタラジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、より好ましくはイミダゾール、ビリジン、ピラジン、ピリダジン、キノリン、チアゾール、オキサゾールであり、更に好ましくは、ビリジン、ピラジンである。

【0038】 $Q_3$  として好ましくは芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは炭素数6～20の芳香族炭化水素環、含窒素芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは、炭素数6～20の芳香族炭化水素環であり、特に好ましくはベンゼン、ナフタレンである。

【0039】 $Q_4$  は環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Q_4$  が形成する環としては飽和あるいは不飽和の炭化水素環、飽和あるいは不飽和のヘテロ環が挙げられ、これらは更に他の環と縮合環を形成しても良い。

【0040】 $Q_4$  が形成する飽和あるいは不飽和の炭化水素環は脂肪族炭化水素環でも芳香族炭化水素環でもよく、好ましくは芳香族炭化水素環(好ましくは炭素数6～30であり、より好ましくは炭素数6～24、さらに

好ましくは炭素数6～20であり、特に好ましくはベンゼン、ナフタレンであり、最も好ましくはベンゼンである。)である。

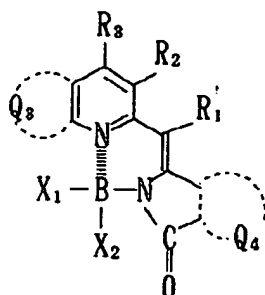
【0041】 $Q_4$  が形成するヘテロ環は、N、OまたはS原子を少なくとも一つを含む3ないし10員のヘテロ環が好ましく、これらは単環であってもよいし、更に他の環と縮合環を形成してもよい。ヘテロ環として好ましくは、芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは5ないし6員の芳香族ヘテロ環である。ヘテロ環の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフエン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、アテリジン、アクリジン フェナントロリン、フェナジン、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデンなどが挙げられる。ヘテロ環として好ましくは、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ピリダジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、キノリン、フタラジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、チアゾール、オキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾールであり、より好ましくはビリジン、ピラジン、ピリダジンであり、更に好ましくは、ビリジンである。

【0042】 $Q_4$  として好ましくは芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは炭素数6～20の芳香族炭化水素環、含窒素芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、ビリジン、ピラジン、ピリダジンであり、特に好ましくは、ベンゼン、ビリジン、ピラジンである。

【0043】一般式(I)で表される化合物のうち更に好ましくは一般式(III-a<sub>1</sub>)、一般式(III-b<sub>1</sub>)で表される化合物である。

【0044】

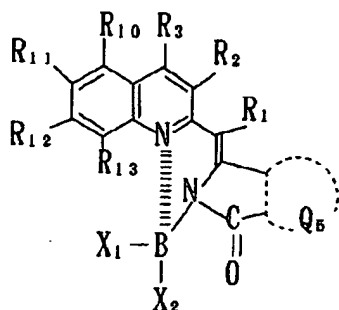
【化9】

一般式 (III-a<sub>1</sub>)

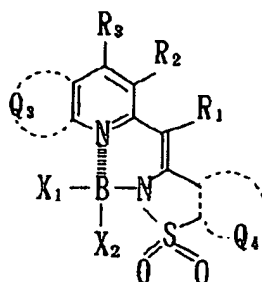
【0045】まず、一般式(III-a<sub>1</sub>)で表される化合物について詳細に説明する。一般式(III-a<sub>1</sub>)中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、Q<sub>3</sub>およびQ<sub>4</sub>はそれぞれ一般式(III)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。一般式(III-a<sub>1</sub>)で表される化合物のうち好ましくは一般式(III-a<sub>2</sub>)で表される化合物である。

【0046】

【化10】

一般式 (III-a<sub>2</sub>)

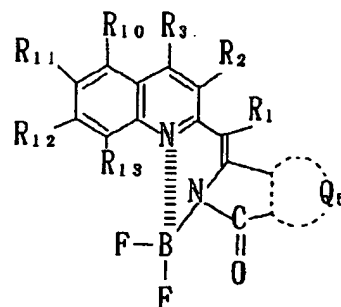
【0047】(式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、X<sub>1</sub>およびX<sub>2</sub>はそれぞれ一般式(III)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>およびR<sub>13</sub>は水素原子または置換基を表し、置換基としては一般式(I)におけるR<sub>1</sub>で置換基として挙げたものが適用でき、R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>およびR<sub>13</sub>として好ましくは、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基、アリール基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、カルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、ヒドロキシ基、シアノ基、ヘテロ環、ハロゲン原子であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、ハロゲン原子であり、更に好ましくは水素原子である。Q<sub>5</sub>は芳香族炭化水素環、あるいは芳香族ヘテロ環を表し、好ましくは炭素数6~20の芳香族炭化水素環、5ないし6員の芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、ピリジン、ピラジン、ヒリダジンであり、更に好ましくは、ベンゼン、ピリジン、ピラジンである。)

一般式 (III-b<sub>1</sub>)

【0048】一般式(III-a<sub>1</sub>)で表される化合物のうちより好ましくは一般式(III-a<sub>3</sub>)で表される化合物である。

【0049】

【化11】

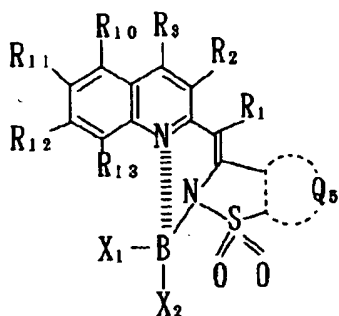
一般式 (III-a<sub>3</sub>)

【0050】(式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>、R<sub>13</sub>、およびQ<sub>5</sub>はそれぞれ一般式(III-a<sub>2</sub>)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。)

【0051】以下に一般式(III-b<sub>1</sub>)で表される化合物について詳細に説明する。一般式(III-b<sub>1</sub>)中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、Q<sub>3</sub>およびQ<sub>4</sub>はそれぞれ一般式(III)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。一般式(III-b<sub>1</sub>)で表される化合物のうち好ましくは一般式(III-b<sub>2</sub>)で表される化合物である。

【0052】

【化12】

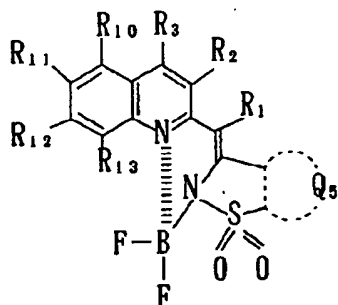
一般式 (III-b<sub>2</sub>)

【0053】(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_{10}$ 、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $X_1$ 、 $X_2$  および  $Q_5$  はそれぞれ一般式(II I-a<sub>2</sub>)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。)

【0054】一般式(III-b<sub>1</sub>)で表される化合物のうちより好ましくは一般式(III-b<sub>3</sub>)で表される化合物である。

【0055】

【化13】

一般式 (III-b<sub>3</sub>)

【0056】(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_{10}$ 、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、および  $Q_5$  はそれぞれ一般式(III-a<sub>2</sub>)におけるそれらと同義であり、好ましい範囲も同様である。)

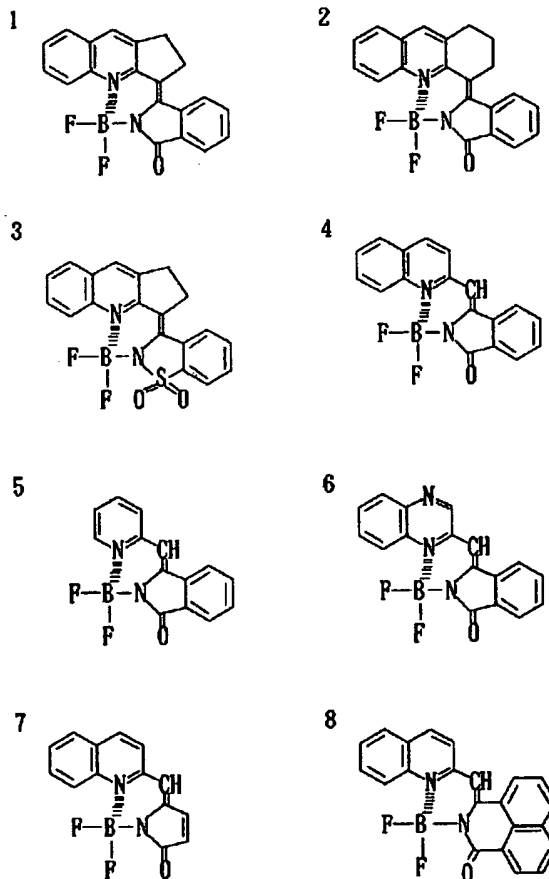
【0057】また、一般式(I)、(II)、(III)、(I II-a<sub>1</sub>)、(III-a<sub>2</sub>)、(III-a<sub>3</sub>)、(III-b<sub>1</sub>)、(III -b<sub>2</sub>)または(III-b<sub>3</sub>)で表される化合物は低分子であっても良いし、残基がポリマー主鎖の接続された高分子量化合物(好ましくは質量平均分子量1000~500 0000、より好ましくは5000~2000000、さらに好ましくは10000~1000000)もしくは、本発明の化合物主鎖に持つ高分子量化合物(好ましくは質量平均分子量1000~5000000、より好

ましくは5000~2000000、さらに好ましくは10000~1000000)であっても良い。高分子量化合物の場合はホモポリマーであっても良いし、他のポリマーとの共重合体であっても良く、共重合体である場合はランダム共重合体であっても、ブロック共重合体であっても良い。本発明で用いる化合物としては、好ましくは低分子量化合物である。また、上記一般式では便宜的に極限構造で表しているがその互変異性体であっても良い。

【0058】以下に本発明の一般式(I)で表される化合物の具体例を示すが本発明はこれに限定されるものではない。また、便宜的に以下に示す化合物は極限構造で表しているがその互変異性体であっても良い。

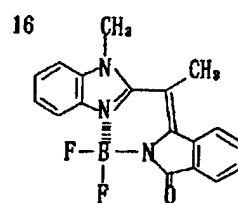
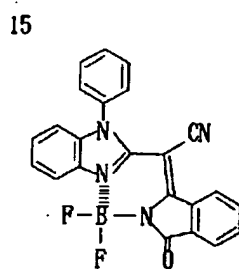
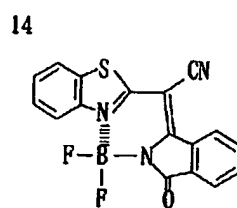
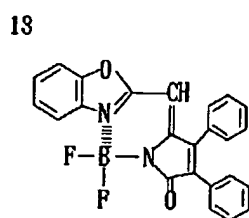
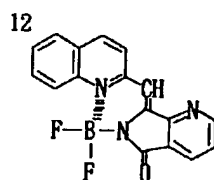
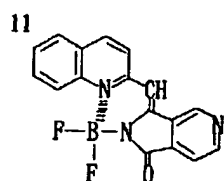
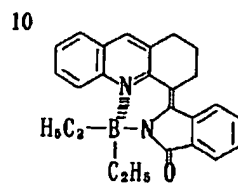
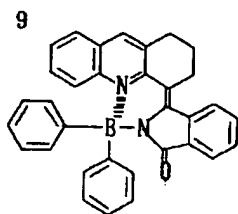
【0059】

【化14】



【0060】

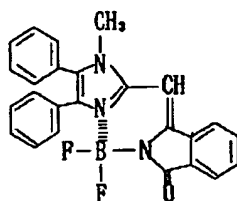
【化15】



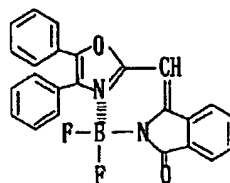
【0061】

【化16】

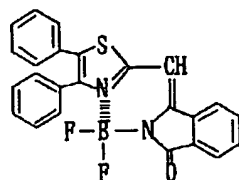
17



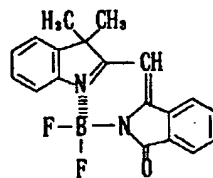
18



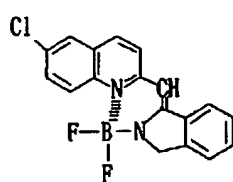
19



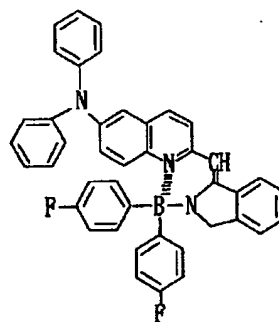
20



21



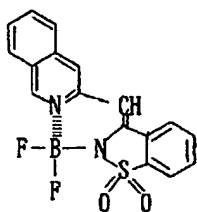
22



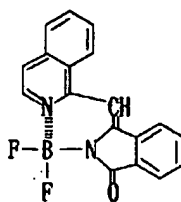
【0062】

【化17】

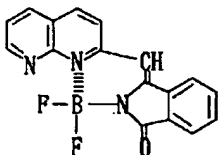
23



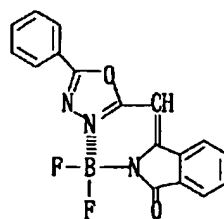
24



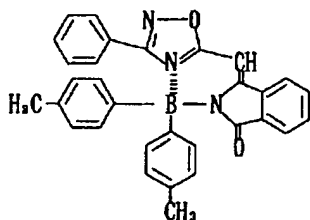
25



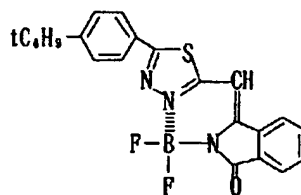
26



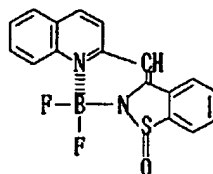
27



28



29



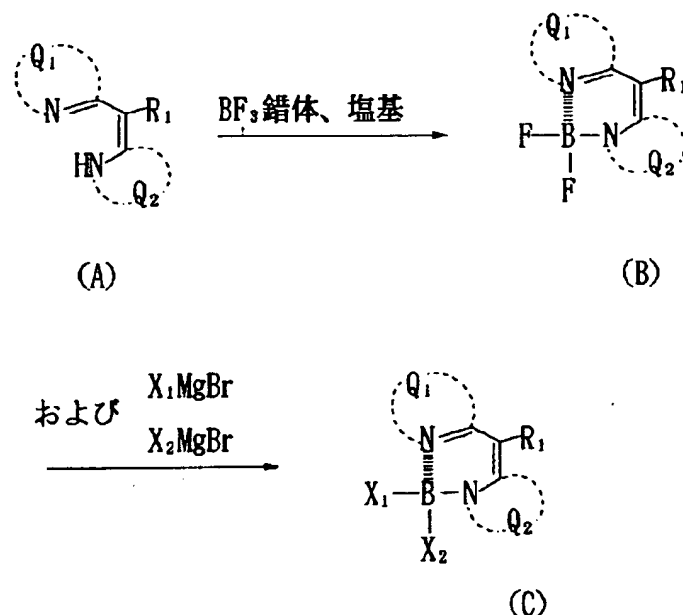
【0063】一般式（I）で表される化合物は例えば、  
Z. Chem., 28巻, 23頁（1988年）、特開平10-  
287819の記載の方法等によって合成できる。ま  
た、本発明の一般式（I）で表される化合物の合成法の

一例をスキーム1に示す。

【0064】

【化18】

## スキーム I



【0065】(式中、Q<sub>1</sub>、Q<sub>2</sub>、R<sub>1</sub>、X<sub>1</sub> および X<sub>2</sub> はそれぞれ一般式 (I) におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。)

【0066】化合物 (B) は具体的には塩基存在下、(A) と BF<sub>3</sub> 錯体とを反応させることにより合成できる。塩基としては、有機塩基 (例えば有機アミン類、アゾール類等)、無機塩基 (例えば、カリウム塩、ナトリウム塩等) のどちらでも良い。塩基の等量は (A) に対して 1~10 当量であり、より好ましくは、1~5 当量であり、更に好ましくは 1~2 当量である。BF<sub>3</sub> 錯体としては BF<sub>3</sub> ジアルキルエーテル錯体 (例えば BF<sub>3</sub> ジメチルエーテル錯体、BF<sub>3</sub> ジエチルエーテル錯体、BF<sub>3</sub> tert-ブチルメチルエーテル錯体等)、BF<sub>3</sub> アルコール錯体 (例えば BF<sub>3</sub> メタノール錯体、BF<sub>3</sub> n-プロパノール錯体等)、BF<sub>3</sub> アミン錯体 (例えば BF<sub>3</sub> エチルアミン錯体、BF<sub>3</sub> ピペリジン錯体等)、BF<sub>3</sub> カルボン酸錯体 (例えば BF<sub>3</sub> 酢酸錯体等)、BF<sub>3</sub> スルフィド錯体 (例えば BF<sub>3</sub> ジメチルスルフィド錯体等) 等があり、好ましくは BF<sub>3</sub> ジアルキルエーテル錯体であり、更に好ましくは BF<sub>3</sub> ジエチルエーテル錯体である。溶媒としては、炭化水素類 (例えば、ヘキサン、ベンゼン、トルエン、キシレン等がある。)、ニトリル類 (例えば、アセトニトリル等がある。)、エーテル類 (例えば、テトラヒドロフラン、1, 4-ジオキサン、ジエチルエーテル等がある。)) が好ましく、反応温度は特に限定はないが、好ましくは 0~150℃ であり、より好ましくは、0~100℃ である。化合物 (C) は具体的には化合物 (B) と有機金属との反応によって得られる。有機金属としてリチウム塩、Grignard 試薬等があり、等量として好ましくは 2~50 当量であ

り、より好ましくは、2~20 当量であり、更に好ましくは 2~10 当量である。溶媒としては、炭化水素類 (例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン等がある。)、エーテル類 (例えば、テトラヒドロフラン、1, 4-ジオキサン、ジエチルエーテル等がある。)) が好ましく、反応温度は特に限定はないが、好ましくは 0~150℃ であり、より好ましくは、0~100℃ である。

【0067】本発明の発光素子は陽極、陰極の一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

【0068】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が 4 eV 以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ (ITO) 等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらと ITO との積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点から ITO が好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常 10 nm~5 μm の範囲のものが好ましく、より好ましくは 50 nm~1 μm であり、更に好ましくは



100nm～500nmである。

【0069】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2mm以上、好ましくは0.7mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ゾルゲル法など）、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、酸素プラズマ処理などが効果的である。

【0070】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K、Cs等）またはそのフッ化物、酸化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）またはそのフッ化物、酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテリビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm～1μmであり、更に好ましくは100nm～1μmである。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百Ω/□以下が好ましい。

【0071】発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入できると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を

注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよい。好ましくは発光層に本発明の化合物を含有するものであるが、本発明の化合物の他の発光材料を用いることもできる。例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタルイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体や遷移金属錯体（例えばトリス（2-フェニルピリジン）イリジウム（III）などのオルトメタル化錯体等）、希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物等が挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm～1μmであり、更に好ましくは10nm～500nmである。発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、LB法、インクジェット法、印刷法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

【0072】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポリフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm～1μmであり、更に好ましくは10nm～500nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材

料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分解することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルローズ、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0073】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントキラノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μmであり、更に好ましくは10nm~500nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解ま

たは分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0074】保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>等の金属酸化物、MgF<sub>2</sub>、LiF、AlF<sub>3</sub>、CaF<sub>2</sub>等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレタ、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エピタキシー）法、クラスターイオンビーム法、イオンブレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンブレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、インクジェット法、印刷法を適用できる。

【0075】

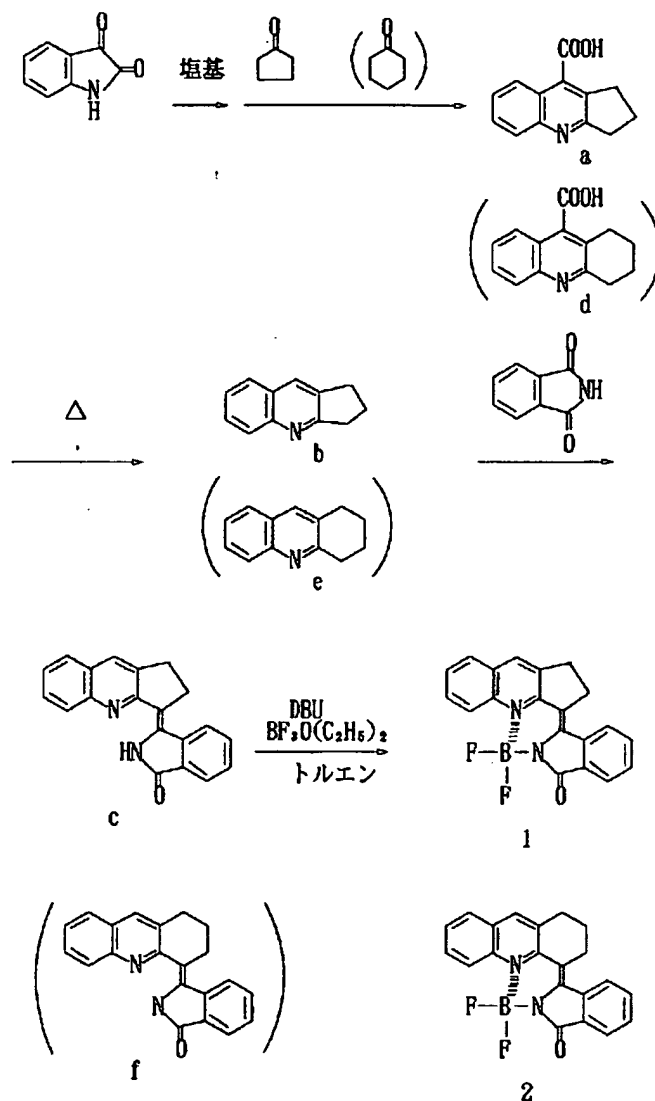
【実施例】以下に実施例を挙げて本発明の一部を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。

【0076】実施例1

例示化合物1の合成

【0077】

【化19】



## 【0078】化合物aの合成法

水酸化カリウム67.3g (1.2mol)を水200mLに溶解し、イサチン58.8g (0.4mol)を少しずつ加えた後、50℃で3.5時間攪拌した。その後、ゆっくりとシクロペンタノン62.2g (0.74mol)を加え、7時間加熱還流した。反応溶液を室温まで冷却した後、濃塩酸120mL、水600mL中に反応液を滴下する。析出した結晶をろ別し乾燥し、白色固体として化合物aを93.1g得た。

## 化合物bの合成法

化合物a 93.1gを500mLの3つ口フラスコに入れ、マントルヒーターで外温300℃で激しく攪拌する。反応の進行とともにフラスコの内容物が溶解した。約2時間攪拌した後、室温まで冷却し、クロロホルム、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で抽出操作を行い、有機相を回収し、硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン-酢酸エチル、9/1～6/4, vol/vol）により精製操

作を行い化合物bを茶色の液体として27.7g（イサチンから収率41%）得た。

## 化合物cの合成法

化合物b 6.2g (36mmol)、フタルイミド5.3g (40mmol)、塩化亜鉛11.4g (84mmol)、ジメチルアニリン90mLを150℃で2時間攪拌した後、180℃4時間攪拌した。反応液を室温まで冷却し、30%塩酸水溶液を500mL加え90℃で1時間攪拌した後、室温まで冷却し、析出した固体をろ別した。得られた固体をクロロホルムに溶解し、水酸化ナトリウム水溶液で有機層を洗い、有機相を回収し、硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（クロロホルム-メタノール、100/3, vol/vol）により精製操作を行い、クロロホルム、エタノールより再結晶操作を行い、化合物cを黄色の結晶として4.9g（収率45%）得た。

## 化合物1の合成法

化合物c 0.5g (1.6mmol)、DBU (1.8-

ジアザビシクロ〔5, 4, 0〕ウンデカー-7-エン)  
0. 24 mL ( 1. 6 mmol ) トルエン 50 mL に BF<sub>3</sub> ジエチルエーテル錯体 0. 5 mL ( 3. 5 mmol ) を室温で、滴下した後、4 時間加熱還流した。反応液を室温まで冷却した後、析出した結晶を濾別した。クロロホルムにより再結晶操作を 2 回行い、化合物 1 を 420 mg ( 収率 72% ) 得た。

融点 305℃ ( 分解温度 )

#### 【0079】実施例 2

##### 化合物 2 の合成

##### 【0080】化合物 e の合成法

化合物 a と同様の方法でシクロペンタノン をシクロヘキサノンに変更することにより、化合物 d を得ることができた。化合物 d 22. 7 g ( 0. 1 mol ) を 500 mL の 3 つ口フラスコに入れ、マントルヒーターで外温 300℃ で激しく攪拌する。反応の進行とともにフラスコの内容物が溶解してくる。約 2 時間攪拌した後、室温まで冷却し、クロロホルム、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で抽出操作を行い、有機相を回収し、硫酸ナトリウムで乾燥、濾過後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー ( ヘキサン-酢酸エチル、9/1~7/3、vol/vol ) により精製操作を行い化合物 e を茶色の固体として 14. 3 g ( イサチンから収率 78% ) 得た。

##### 化合物 f の合成法

化合物 e 5. 5 g ( 30 mmol )、フタルイミド 4. 8 g ( 33 mmol )、塩化亜鉛 9. 4 g ( 69 mmol )、ジメチルアニリン 50 mL を 150℃ で 2 時間攪拌した後、180℃ 4 時間攪拌した。反応液を室温まで冷却し、3 N 塩酸水溶液を 200 mL 加え 90℃ で 1 時間攪拌した後、室温まで冷却し、析出した固体を濾別した。得られた固体を水で洗い、クロロホルム、エタノールにより再結晶操作を行い、化合物 f を黄色の結晶として 6. 5 g ( 収率 69% ) 得た。

##### 化合物 2 の合成法

化合物 f 1. 0 g ( 3. 2 mmol )、DBU 0. 48 mL ( 3. 2 mmol ) トルエン 100 mL に BF<sub>3</sub> ジエチルエーテル錯体 1. 0 mL ( 7. 0 mmol ) を室温で、滴下した後、4 時間加熱還流した。反応液を室温まで冷却した後、析出した結晶を濾別した。アセトニトリルにより再結晶操作を 2 回行い、化合物 2 を 500 mg ( 収率 43% ) 得た。

融点 277℃ ( 分解温度 )

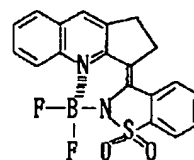
#### 【0081】実施例 3

##### 化合物 3 の合成

##### 【0082】化合物 g の合成法

##### 【0083】

#### 【化 20】



8

【0084】化合物 b 6. 76 g ( 40 mmol )、サッカリン 8. 05 g ( 44 mmol )、塩化亜鉛 12. 5 g ( 91 mmol )、ジメチルアニリン 70 mL を 150℃ で 2 時間攪拌した後、180℃ 5 時間攪拌した。反応液を室温まで冷却し、3 N 塩酸水溶液を 300 mL 加え 90℃ で 1 時間攪拌した後、室温まで冷却し、析出した固体を濾別し、化合物 g を赤色の結晶として 3. 5 g ( 収率 26% ) 得た。

##### 化合物 3 の合成法

化合物 g 1. 0 g ( 3. 0 mmol )、DBU 0. 45 mL ( 3. 0 mmol ) トルエン 100 mL に BF<sub>3</sub> ジエチルエーテル錯体 0. 76 mL ( 6. 0 mmol ) を室温で、滴下した後、5 時間加熱還流した。反応液を室温まで冷却した後、析出した結晶を濾別した。アセトニトリルにより再結晶操作を 2 回行い、化合物 3 を 200 mg ( 収率 18% ) 得た。

融点 317℃ ( 分解温度 )

#### 【0085】実施例 4

##### 発光素子作製評価

25 mm × 25 mm × 0. 7 mm のガラス基板上に ITO を 150 nm の厚さで製膜したものを透明支持基板とした。この透明支持基板をエッチング、洗浄後、ポリ ( N-ビニルカルバゾール ) 40 mg、PBD ( 2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール ) 12 mg、表 1 記載の化合物 0. 5 mg を 1, 2-ジクロロエタン 3 mL に溶解し、洗浄した ITO 基板上にスピコートした。生成した有機薄膜の膜厚は、約 120 nm であった。有機薄膜上にバタニングしたマスク ( 発光面積が 4 mm × 5 mm となるマスク ) を設置し、蒸着装置内でマグネシウム : 銀 = 10 : 1 を 50 nm 共蒸着した後、銀 50 nm を蒸着した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット 2400 型を用いて、直流定電圧を発光素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計 BM-8、発光波長、を浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザー PMA-11 を用いて測定した。その結果を表 1 に示す。

#### 【0086】

##### 【表 1】

表1

番号	化合物	最高輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	発光波長 $\lambda_{\max}$ (nm)	半値幅 (nm)	備考
1	Zn(OXD) <sub>2</sub>	410	475	112	比較例
2	化合物1	528	479	56	本発明
3	化合物2	320	455	70	本発明
4	化合物3	551	468	55	本発明

【0087】表1の結果から分かるように本発明の化合物はドーパ色素として機能し、比較化合物と比べ、半値幅の狭いシャープな発光を有していることが分かった。

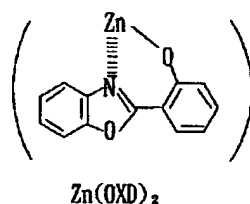
#### 【0088】実施例5

実施例4と同様にITO基板をエッチング、洗浄後、TPD(N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニルベンジジン)約40nm、表2記載化合物およびZn(OXD)<sub>2</sub>をそれぞれ蒸着速度0.004nm/秒、0.4nm/秒で膜厚約60nmとなるように10<sup>-3</sup>~10<sup>-4</sup>Paの真空中で、基板温度室温の条件下蒸着した。共蒸着した。次いで実施例1と

同様に陰極を蒸着し、発光素子を作製した。

【0089】

【化21】



【0090】

【表2】

表2

番号	ホスト 材料	ドーパ 材料	最高輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	発光波長 $\lambda_{\max}$ (nm)	半値幅 (nm)	備考
1	Zn(OXD) <sub>2</sub>	なし	620	475	110	比較例
2	Zn(OXD) <sub>2</sub>	化合物1	2800	484	70	本発明
3	Zn(OXD) <sub>2</sub>	化合物2	1610	476	90	本発明
4	Zn(OXD) <sub>2</sub>	化合物3	2530	475	75	本発明

【0091】表2の結果から明らかなように、本発明の化合物を用いた素子では、蒸着方式でも本発明の化合物をドーパすることにより半値幅の狭いシャープな発光が得られ、また、発光効率が向上することが分かった。

【0092】

【発明の効果】本発明により、半値幅が狭く、色純度が高く、高輝度、高効率の発光が可能な発光素子が得られる。また、通常輝度の低い塗布方式でも良好な発光特性が得られ、製造コスト面等で有利な素子作製が可能となる。



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**